



Etude du fluage du dioxyde d'uranium : caractérisation par essais de flexion et modélisation mécanique

Christian Colin

► To cite this version:

Christian Colin. Etude du fluage du dioxyde d'uranium : caractérisation par essais de flexion et modélisation mécanique. Mécanique [physics.med-ph]. École Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2003. Français. NNT : . tel-00005741

HAL Id: tel-00005741

<https://pastel.archives-ouvertes.fr/tel-00005741>

Submitted on 5 Apr 2004

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

THESE

pour obtenir le grade de
Docteur de l'Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris
Spécialité "Sciences et Génie des Matériaux"

présentée et soutenue publiquement par

Christian COLIN

Le 23 Septembre 2003

**ETUDE DU FLUAGE DU DIOXYDE D'URANIUM :
Caractérisation par essais de flexion et modélisation mécanique.**

Directeur de thèse : Michel BOUSSUGE, ENSMP-CDM

Jury

M. Didier BERNACHE	SPCTS, Limoges	Président
M. Didier BOUVARD	GPM2, ENSPG, Grenoble	Rapporteur
M. Tanguy ROUXEL	LARMAUR, Rennes	Rapporteur
M. Daniel BARON	EDF	Examinateur
M. Michel BEAUVY	CEA Cadarache	Examinateur
M Yannick GUERIN	CEA Cadarache	Invité
M Philippe THEVENIN	EDF	Invité
M. Michel BOUSSUGE	ENSMP, Paris	Directeur

**Centre des Matériaux P.M. Fourt de l'Ecole des Mines de Paris,
B.P. 87, 91003 Evry Cedex**

Avant-Propos

Comme la tradition le préconise, je commence par les remerciements ; curieuse tradition en y réfléchissant bien... pour vous distraire et pour ceux que cela intéresse moins, j'ai glissé dans ces pages quelques devinettes publiées par l'Imagerie d'Epinal^{*}, celle là même qui réalise les fameuses images populaires. Oui, un peu de chauvinisme ne fait pas de mal. Une astuce pour commencer : il ne faut pas hésiter à tourner la tête dans tous les sens^{**}. J'espère que cela va suffisamment vous détendre^{***} et vous encourager à lire entièrement ce manuscrit.



Ce travail de thèse s'est déroulé au Centre des Matériaux de l'Ecole des Mines de Paris en partenariat avec le Département d'Etudes des Combustibles du CEA Cadarache. Cette thèse est évidemment le fruit d'un travail d'équipe et de nombreuses rencontres. Je souhaite ici remercier toutes les personnes qui ont participé à l'aventure.

Avant de commencer, je tiens à signaler que je vais certainement oublier certains personnages ; ce n'est pas volontaire, et je leur prie de bien vouloir m'excuser par avance. De plus l'ordre d'apparition n'a aucune signification précise, enfin à priori...

A messieurs les membres du jury

Je remercie l'ensemble des membres du jury pour l'intérêt qu'ils ont manifesté pour ce travail :

À plus particulièrement Mr BERNACHE pour m'avoir fait l'honneur de présider ce jury et d'avoir si brillamment animé et dirigé ma soutenance.

À Mr BOUVARD et Mr ROUXEL pour avoir accepté la charge de rapporteur, et ainsi d'avoir enrichi très nettement la discussion et mon manuscrit. Par là même, je pense à tous mes professeurs qui m'ont donné le goût pour les sciences et ont su me motiver pour arriver jusqu'ici.

À Mr BARON et Mr THEVENIN d'EDF, qui m'ont toujours montré leur intérêt pour ce travail. Je tiens également à y associer Mr LECLERCQ et Mr SAUTER. Je remercie vivement Philippe de m'avoir exposé et expliqué les subtilités de la dure vie du combustible en réacteur.

À Mr BEAUVY et Mr GUERIN, représentants du CEA. Merci surtout à Michel, initiateur du projet, pour ton enthousiasme communicatif, pour ton soutien motivant et inconditionnel, même et surtout dans les moments les plus compliqués.

Au personnel du CEA Cadarache

Cette étude avec le CEA a été l'occasion de maintes rencontres et de nombreuses aides. Je remercie donc toutes les personnes qui ont soutenu (quelque fois par alternance) et fait avancer ce projet le plus loin possible : comme Mme MOCELLIN, Mme BASINI, Mlle DHERBEY, Mme STRUZZIK, Mr GATT, Mr MENARD, Mr SLADKOFF. Merci à Mr PIERACCINI de m'avoir accueilli dans son installation et d'avoir corrigé mes petites erreurs de débutant. Je pense enfin à François, Sandrine, et tout le personnel du Labo UO₂, pour m'avoir guidé lors de mes cours séjours à Cadarache. Je pense que cette collaboration a été fructueuse et qu'elle va continuer dans ce sens.

Au groupe CEM

Je remercie Michel BOUSSUGE de m'avoir accueilli au sein de son groupe et de m'avoir accordé sa confiance et son soutien. Je lui suis reconnaissant de m'avoir laissé toutes les libertés possibles pour amener cette thèse là où je le souhaitais. Je me souviendrai de nos échanges lors de ces (longues ?) années très enrichissantes.

^{*} www.imagerie-epinal.com

^{**} Il est peut être plus judicieux de tourner le manuscrit...

^{***} Ce n'est pas toujours facile. Pour commencer regarder bien la chevelure de la jeune fille pour y trouver la grand-mère. Cette devinette est assez évidente, faites de même pour les suivantes...

Je remercie toute l'équipe qui en est indissociable : Anne qui m'a autorisé à laisser mon nom sur la porte du bureau, Gwen qui m'a initié au comportement mécanique à (très) haute température, Ludo à qui je souhaite bonne chance dans tout ce qu'il voudrait entreprendre même si c'est très souvent ambitieux. Mais je me tourne surtout vers Sylvain GAILLIEGUE, super-(héro)-technicien de l'équipe. Il n'y a pas assez de place ici pour vanter tous ses mérites**** : sa disponibilité ; ses compétences ; son efficacité et sa rapidité dans la réflexion, la conception, l'usinage et le montage de pièces inimaginables ; pour ces idées encore plus folles et (ir-)réalistes que même un jeune thésard désespéré n'oserait imaginer. Enfin et surtout pour toute l'énergie et l'enthousiasme qu'il a mis dans ce dispositif. Merci beaucoup Sylvain, je penserai encore longtemps à nos joutes contre les fuites de vide à coup de faisceau Laser ou nos combats pour atteindre le micron tant désiré. Je pense que nous avons fini par gagner.

A l'équipe du Centre

Comme vous le lirez par la suite, pour mettre au point ce dispositif, il a fallu beaucoup de temps et de compétences. Je veux ici remercier le personnel de l'atelier, où j'y ai passé beaucoup de temps. Je pense notamment à James et Jojo qui m'ont toujours accueilli gentiment avec énormément de compréhension. Je vante leur efficacité dans la réalisation des pièces, même et surtout les plus loufoques. Alain et Jo m'ont également beaucoup aidé pour toute la partie électronique et dans la chasse aux bruits exotiques. Je remercie aussi tous les techniciens que j'ai croisés au détour d'un couloir ou d'un bureau et qui m'ont donné des idées et leur avis pour développer cette machine. L'extensomètre Laser a également été le sujet de nombreux débats. Je voudrais remercier Mr KUGLER et toute son équipe de Fiedler Optoelektronik GmbH, qui nous ont fournis et adapté ce système sensible à notre cas particulier :

« Ich wollte Ihnen für die ganze Hilfe bedanken, daß Sie uns in diesem Studium gebracht haben »

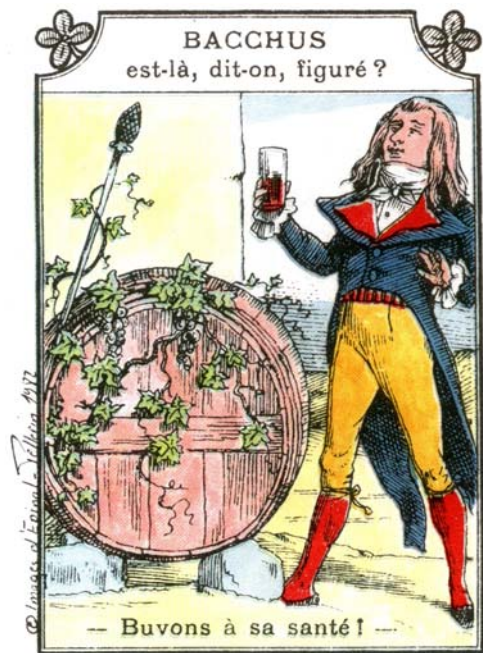
J'adresse mes remerciements à l'équipe COCAS pour les aides qu'ils m'ont apportées là où mes limites numériques étaient largement débordées : Françoise, Bruno, Greg, Samuel, Stéphane, Sylvain entre autres...

Je tiens à remercier chaleureusement les thésards et autres personnages du laboratoire, qui sont pour la plupart devenu des amis avec qui j'ai partagé ces quelques années***** : Sylvain, Virginie, Bruno, Sylvain, Quentin, Seb, « les Franck's », Fred, Thierry, Vincent, Arnaud, Nader et Stéphane, Julie, Laurent, Sandrine, JC, et j'en oublie forcément.

Je pense forcément à « mes deux compères », Laurent et Xavier, avec lesquels j'ai passé de très bons et très nombreux moments. Je leur souhaite tout ce qu'il faut dans leur vie respective, mais je crois que c'est très bien parti.

Bref, vous l'aurez compris, je remercie l'ensemble du personnel du Centre des Matériaux.

Mon ami Ben, qui est d'un premier abord assez froid (et lent), et qui m'a énormément aidé. Je lui ai bien rendu en le malmenant au possible, jusqu'à faire un barbecue avec son processeur. Il ressort même de cette fin de thèse amputé d'un disque dur. Je pense qu'il a bien mérité une longue période de repos ou une seconde vie moins stressante comme l'acquisition de données.

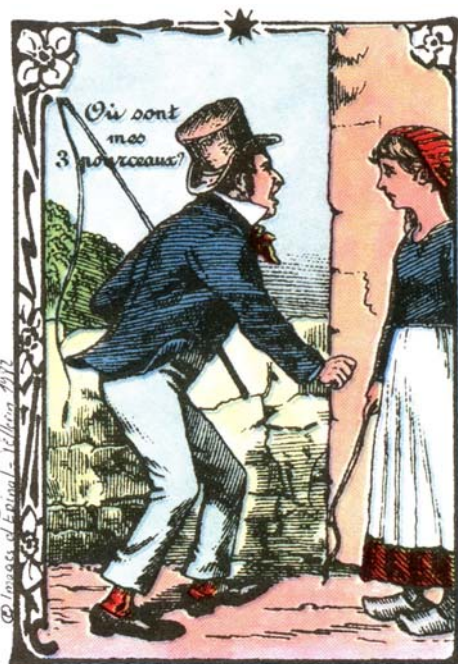


**** En fait, si, je crois qu'il y a presque assez de place ; le problème est plutôt de trouver les mots justes.

***** C'est évidemment dans le désordre et sans tenir compte de la politesse

☐ M^{me}
 Maintenant je n'ai pas oublié ☐ M^{lle} . Je garde toujours le meilleur pour la
☐ M^r (Cocher et remplir comme il faut)
☐ Autre

fin. Comme je te connais bien et je sais que tu es très timide, je comprends facilement que tu ne souhaite pas être cité(e) et être mis(e) en avant. Mais sache que je pense évidemment à toi.



Mais non ce n'est pas fini ! Comment ne pas remercier mes amis de longues dates : Thierryzzzz, Maffeu qui arrive à se déplacer dans les très grandes occasions, Ludo, JM, Nico, Olivier, Pizzus. Il faut aussi que je vous parle de mes partenaires mail-tennis-tique : Fred et Goth ou Goth et Fred, c'est du pareil au même : que d'échanges effectués ! C'est inestimable... enfin j'ai encore les stats sur le disque dur. Ce sont bien plus que de beaux ~~mailers~~ parleurs, ce sont des vrais amis, j'ai pu le vérifier de nombreuses fois. Aussi simplement, merci les gars ! Toutefois deux petits messages :

« Bonne chance Fred pour tenir bon jusqu'au mois de septembre. »

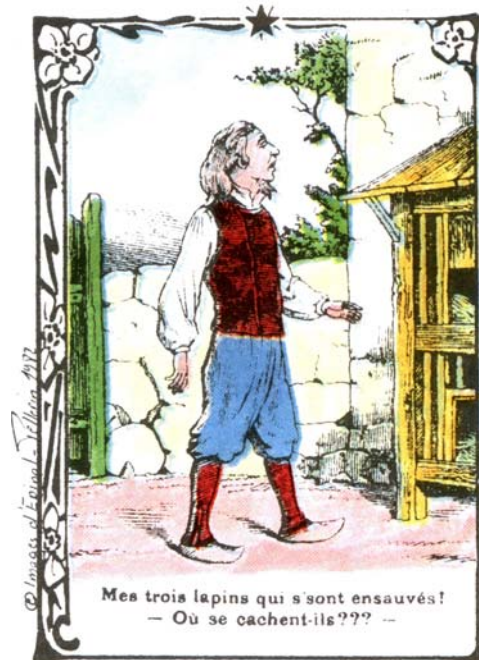
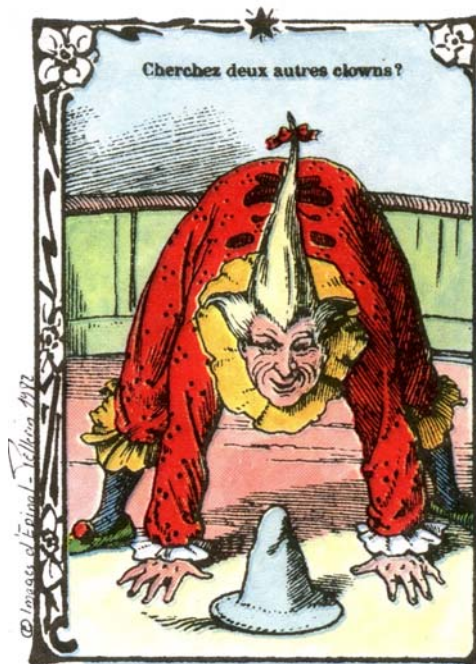
« Gutes Glück Goth, der Fasan. Jetzt wartet man auf die Folge. Nimm nicht zuviel Zeit. Du weißt sehr gut, daß ich immer ungeduldig bin. Dann in der Arbeit... »

Enfin et surtout, comme il est toujours temps, je voudrais remercier ma famille : mes parents qui m'ont toujours aidé et soutenu dans mes choix... et mes cascades, j'en ai fait quelques unes ces temps-ci... ; mon frère ; ma tante.

Je remercie évidemment Cindy, qui m'accompagne et me supporte depuis quelques temps. J'espère et je pense que cela va continuer encore un bon bout de temps.

Merci donc à toutes et à tous, et bonne lecture.

Christian



*A Thibault,
Merci Papa, Merci Ma Maman à Moi,
Pour ma Puce.*

Résumé

Ces travaux de thèse s'inscrivent dans le cadre des études sur les interactions pastille-gaine dans les assemblages combustibles utilisés dans les centrales nucléaires. En effet, l'exploitant (EDF) doit assurer et démontrer l'intégrité de l'ensemble des crayons composant l'assemblage. Pour cela, on doit notamment connaître (et si possible maîtriser) les propriétés viscoplastiques du combustible. Le but de cette thèse a été de caractériser le fluage du dioxyde d'uranium dans des conditions de transitoires de puissance de centrale nucléaire.

Nous nous sommes intéressés aux résultats disponibles dans la littérature sur le comportement mécanique du dioxyde d'uranium UO_2 . Ce sont essentiellement des essais de compression qui ont permis de caractériser le fluage de la céramique nucléaire, et qui ont prouvé que le fluage du dioxyde d'uranium est caractérisé par deux types de comportement, en fonction du niveau de contraintes appliqué.

Pour évaluer les sollicitations dans la pastille combustible, EDF ou CEA ont développé des codes de calcul spécifiques, dit globaux. Partant d'un de ces calculs lors des transitoires de puissance, nous avons dégagé les ordres de grandeur des sollicitations vues par le combustible (température, gradients thermiques, déformations, vitesses de déformations,...). Le calcul des contraintes lors de transitoires de puissance nécessite l'identification de lois de comportement capables de décrire le comportement de la céramique pour de faibles taux de déformation et, notamment, sous des contraintes de traction. Partant de ce constat nous avons choisi de caractériser le comportement du dioxyde d'uranium en flexion. Le cahier des charges de cette étude imposant de prélever les échantillons directement dans les pastilles, ceci dans un souci de représentativité, l'entraxe de sollicitation a été fixé à 10 mm. Pour cette étude nous avons donc développé un dispositif spécifique de flexion trois points pouvant atteindre 2000°C sous atmosphère contrôlée ($\text{Ar} + 5\%\text{H}_2$). Une attention particulière a été portée sur la mesure de la flèche ; elle est assurée par un extensomètre à ombrage laser dédié, d'une résolution de $\pm 2\text{ }\mu\text{m}$ à haute température.

En utilisant ce dispositif, nous avons testé en fluage des éprouvettes d'épaisseur 0,5 à 1 mm. Dans nos conditions d'essai, le fluage stationnaire a pu être décrit à l'aide d'une loi de Norton avec un exposant de contrainte de 1,73 et une énergie d'activation de 540 kJ.mole^{-1} . Nous avons ensuite modélisé le comportement mécanique du combustible : l'introduction de variables internes dans une loi à écrouissage cinématique a permis de représenter l'ensemble des courbes de fluage et les phénomènes de recouvrance de la déformation présentés lors de déchargements partiels. L'identification a été réalisée par méthode inverse, couplant optimisation des paramètres et calcul par éléments finis des déformations de l'éprouvette de flexion. L'application de cette loi dans un calcul de transitoire de puissance démontre que les capacités de relaxation du matériau ne permettent pas de prévenir une rupture radiale du combustible en fin de montée de puissance. Lors du maintien à puissance élevée, la température élevée à cœur autorise une diminution des contraintes, notamment près des évidements. Il en résulte un écoulement de matière principalement axial, clairement confirmé par l'observation de pastilles usagées.

L'application finale de notre dispositif expérimental a été de tester des éprouvettes implantées aux ions, sur une profondeur de $50\text{ }\mu\text{m}$. La faible épaisseur de nos échantillons a permis de mettre en évidence l'effet de l'irradiation sur le fluage de UO_2 .

Mots-clés : dioxyde d'uranium, UO_2 , fluage, flexion trois points, faible entraxe, dispositif expérimental, haute température, extensomètre Laser, modélisation mécanique, irradiation

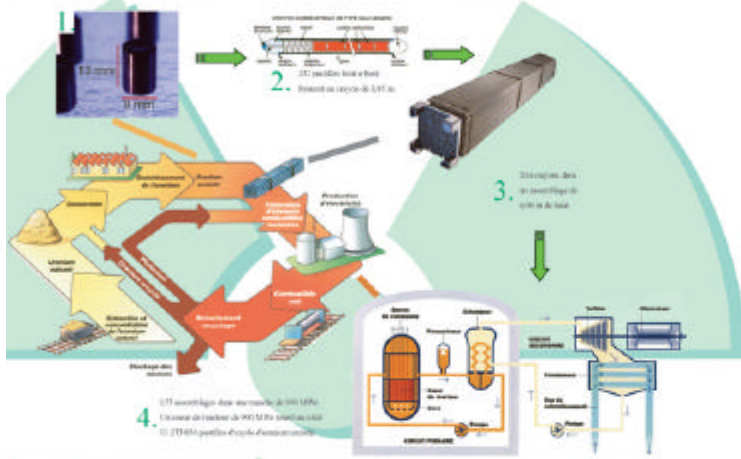
Etude du Fluage du Dioxyde d'Uranium en Flexion.



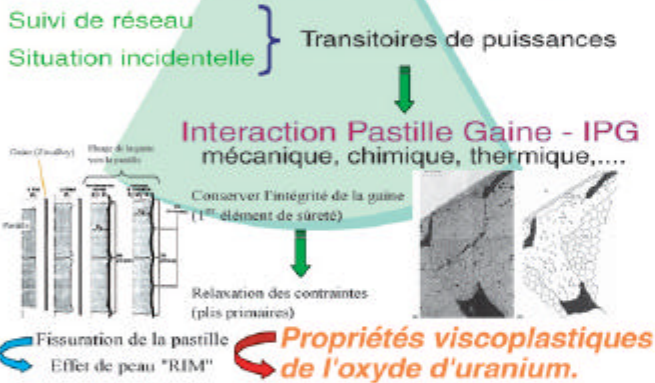
Christian COLIN, Michel BOUSSUGE, Sylvain GAILLIGUE
Ecole des Mines de Paris
Centre des Matériaux P.M. Fourt
BP 87, 91003 Evry Cedex, France
e-mail : christian.colin@mat.ensmp.fr



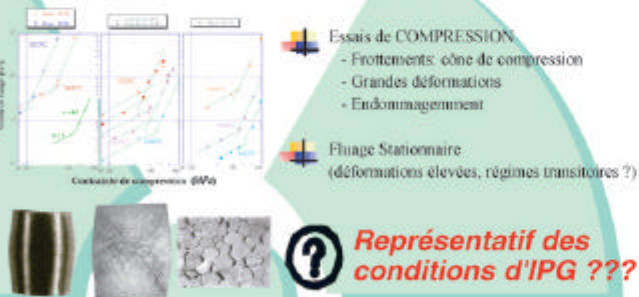
Contexte - Réacteur REP



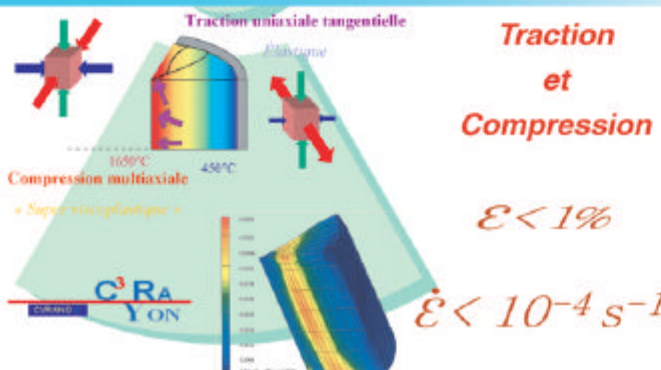
Objectif de l'étude



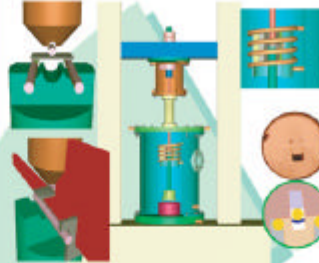
Bibliographie



Sollicitations en transitoire

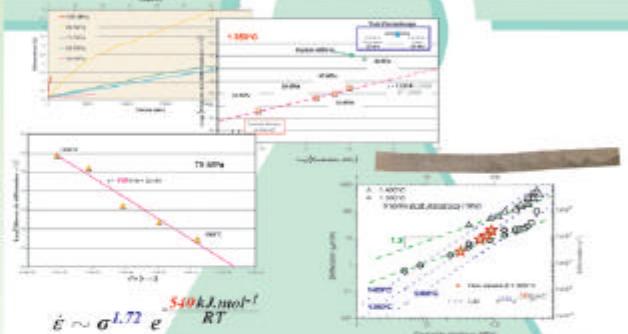


Dispositif expérimental

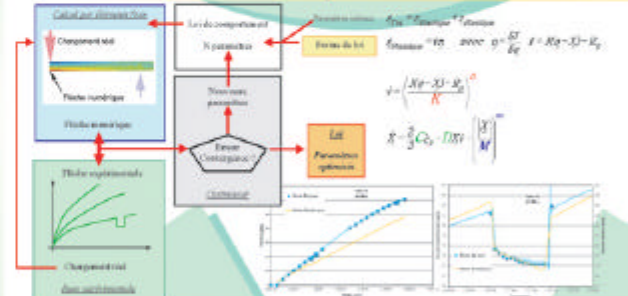


- Entraxe : **10 mm**
- Enceinte double-paroi refroidie par eau : **Ar + 5% H₂**
- Four à induction : **de 800 à 1 500°C**
- Extensométrie Laser : **± 2 µm à 1 500°C**

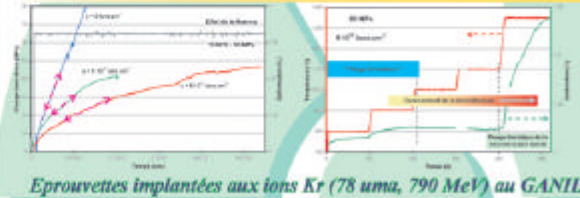
Fluage stationnaire



Loi de comportement



Effet de l'irradiation



Conclusions

- ◆ Sollicitations complexes en réacteur (traction et compression)
- ◆ Faibles déformations et vitesses de déformation
- ◆ Essais de flexion 3 points sous atmosphère contrôlée à haute température
- ◆ Tests sur des éprouvettes de très petites dimensions prélevées dans les pastilles $4 \times 0,5 \times 12 \text{ mm}^3$
- ◆ Fluage stationnaire en flexion en accord avec la littérature
- ◆ Faible exposant de contrainte
- ◆ Loi de comportement mécanique avec variables internes d'écrouissage cinématique
- ◆ Identification par méthode inverse
- ◆ Mise en évidence d'une influence de l'irradiation sur le fluage

Essais de flexion 3 points à haute température sous atmosphère contrôlée

TABLE DES MATIERES :

1	INTRODUCTION GENERALE	5
1.1	PRINCIPE ET FONCTIONNEMENT D'UN REACTEUR	7
1.2	ASSEMBLAGE ET COMBUSTIBLE DANS LES REP	8
1.3	FONCTIONNEMENT EN REGIME DE BASE DANS LES REP	11
1.4	TRANSITOIRES DE PUISSANCE	12
1.5	SITUATION DE CETTE THESE - IPG.....	14
2	CONDITIONS DE FONCTIONNEMENT EN REACTEURS A EAU PRESSURISEE	19
2.1	PRODUCTION ET EVACUATION DE LA CHALEUR.....	22
2.2	EFFETS DE LA TEMPERATURE	24
2.3	EFFETS DE L'IRRADIATION	26
2.3.1	<i>Création de défauts.....</i>	<i>27</i>
2.3.2	<i>Diffusion</i>	<i>28</i>
2.3.3	<i>Fluage.....</i>	<i>28</i>
2.3.4	<i>Gonflement et produit de fissions</i>	<i>29</i>
2.3.5	<i>Rim effect</i>	<i>31</i>
2.4	FONCTIONNEMENT D'UN REACTEUR REP.....	33
3	REVUE BIBLIOGRAPHIQUE DU COMPORTEMENT MECANIQUE DE UO₂.....	37
3.1	FABRICATION DU COMBUSTIBLE.....	39
3.1.1	<i>Cycle du combustible.....</i>	<i>39</i>
3.1.2	<i>Fabrication des pastilles.....</i>	<i>40</i>
3.1.2.1	<i>La poudre UO₂.....</i>	<i>40</i>
3.1.2.2	<i>La pastille UO₂</i>	<i>40</i>
3.2	PROPRIETES PHYSIQUES DE UO ₂	42
3.2.1	<i>Structure cristallographique.....</i>	<i>42</i>
3.2.2	<i>Ecart à la stœchiométrie.....</i>	<i>44</i>
3.2.3	<i>Dislocations dans la structure fluorine</i>	<i>46</i>
3.2.4	<i>Diffusion dans UO₂.....</i>	<i>46</i>
3.3	COMPORTEMENT MECANIQUE.....	47
3.3.1	<i>Plasticité - Rupture</i>	<i>48</i>
3.3.1.1	<i>Carte de rupture</i>	<i>48</i>
3.3.1.2	<i>Transition d'un comportement fragile vers viscoplastique.</i>	<i>49</i>
3.3.1.3	<i>Essais d'écroutissage : mise en évidence d'un pic de compression</i>	<i>50</i>
3.3.2	<i>Fluage.....</i>	<i>51</i>
3.3.2.1	<i>Carte de fluage.....</i>	<i>51</i>
3.3.2.2	<i>Effets des paramètres macroscopiques</i>	<i>52</i>
3.3.2.3	<i>Influence de la microstructure</i>	<i>54</i>
3.3.2.4	<i>Mécanismes de déformation.....</i>	<i>55</i>
3.3.2.5	<i>Description à l'aide d'une loi de fluage stationnaire.....</i>	<i>60</i>
3.4	CONCLUSION	62

4	SOLLICITATIONS THERMOMECHANIQUES EN TRANSITOIRE DE PUISSANCE	65
4.1	CONDITIONS D'UTILISATION DES CODES DE CALCUL	67
4.2	DESCRIPTION DU REGIME DE BASE, CONDITIONNEMENT DU CRAYON	68
4.3	DESCRIPTION D'UNE RAMPE DE PUISSANCE, EVOLUTION DE LA TEMPERATURE	69
4.4	DESCRIPTION D'UNE RAMPE DE PUISSANCE, EVOLUTION DES CONTRAINTES MECANIQUES	71
4.5	CONCLUSION	74
5	DISPOSITIF EXPERIMENTAL	77
5.1	ELEMENT CHAUFFANT : FOUR GRAPHITE A INDUCTION	80
5.2	MESURE DE LA CHARGE ET ENSEMBLE DE CHARGEMENT	82
5.3	ATMOSPHERE CONTROLEE : L'ENCEINTE D'ESSAI	84
5.4	MESURE DES DEFORMATIONS : EXTENSOMETRE LASER	86
5.4.1	<i>Principe</i>	86
5.4.2	<i>Limites d'utilisation de l'extensomètre et solutions proposées</i>	87
5.5	REGLAGE ET MISE EN PLACE DU DISPOSITIF	89
5.6	MESURES DES DIFFERENTS SIGNAUX UTILES : CHAINES D'ACQUISITION	90
5.7	RISQUES D'UTILISATION DE L'APPAREIL	90
5.8	DESCRIPTION MECANIQUE DE L'ESSAI DE FLEXION	91
5.8.1	<i>Solution élastique</i>	91
5.8.2	<i>Fluage en flexion</i>	92
5.8.3	<i>Régime stationnaire</i>	93
5.9	VALIDATIONS DES MESURES	94
5.9.1	<i>Stabilité thermique</i>	94
5.9.2	<i>Essais mécaniques</i>	95
5.9.3	<i>Mesures de modules d'élasticité</i>	97
5.9.4	<i>Mesures de déformations permanentes plastiques</i>	99
5.10	CONCLUSION	101
6	FLUAGE DU DIOXYDE D'URANIUM EN FLEXION	103
6.1	COMPORTEMENT DU DIOXYDE D'URANIUM EN FLEXION, BIBLIOGRAPHIE	105
6.1.1	<i>Comportement vis-à-vis de la fissuration</i>	105
6.1.2	<i>Fluage du dioxyde d'uranium en flexion</i>	107
6.2	COMPARAISON DES COMPORTEMENTS	109
6.3	MATERIAU UTILISE POUR NOTRE ETUDE	110
6.3.1	<i>Microstructure</i>	110
6.3.2	<i>Découpes des éprouvettes</i>	113
6.4	INTERPRETATION DES RESULTATS	115
6.5	PRESELECTION DES TEMPERATURES D'ESSAI	115
6.6	COMPORTEMENT EN FLEXION	116
6.6.1	<i>Ecrouissage et élasticité à 1 350°C</i>	116
6.6.2	<i>Fluage stationnaire à 1 350°C, influence de la contrainte</i>	118
6.6.3	<i>Fluage stationnaire sous 75 MPa, influence de la température</i>	120
6.6.4	<i>Vérification de l'exposant de contrainte, exploitation d'essai de relaxation</i>	122
6.6.5	<i>Vérification de l'énergie d'activation, retour sur les essais anisothermes</i>	123
6.7	CONFRONTATION DE NOS RESULTATS AVEC LA LITTERATURE	125
6.8	CONCLUSIONS	128

7	IDENTIFICATION D'UNE LOI DE COMPORTEMENT MECANIQUE	131
7.1	CHOIX D'UNE LOI	133
7.2	ESSAIS DE COMPRESSION.....	136
7.2.1	<i>Influence de la contrainte, à 1 500°C.....</i>	<i>137</i>
7.2.2	<i>Evolution avec la température.....</i>	<i>139</i>
7.2.3	<i>Validation</i>	<i>142</i>
7.2.4	<i>Récapitulatif.....</i>	<i>144</i>
7.3	ESSAIS DE FLEXION	146
7.3.1	<i>Problématique.....</i>	<i>146</i>
7.3.2	<i>Simulation par calcul aux éléments finis</i>	<i>148</i>
7.3.3	<i>Influence de la contrainte, à 1 350°C.....</i>	<i>149</i>
7.3.4	<i>Evolution avec la température.....</i>	<i>152</i>
7.3.5	<i>Validation de la loi</i>	<i>156</i>
7.4	COMPARAISON DES DEUX LOIS	158
7.4.1	<i>Deux domaines de comportements.....</i>	<i>158</i>
7.4.2	<i>Zone de transition : essais de fluage</i>	<i>158</i>
7.4.3	<i>Essais à vitesses de déformation imposée.....</i>	<i>161</i>
7.5	CONCLUSIONS	162
8	SIMULATION D'UNE RAMPE DE PUISSANCE	165
8.1	CHOIX DE MODELISATION ET CONDITIONS DE CALCUL	167
8.1.1	<i>Historique de puissance.....</i>	<i>168</i>
8.1.2	<i>Maillage.....</i>	<i>168</i>
8.1.3	<i>Calculs thermomécaniques.....</i>	<i>169</i>
8.2	CALCUL THERMIQUE.....	169
8.2.1	<i>Conditions aux limites</i>	<i>169</i>
8.2.2	<i>Propriétés thermiques du matériau</i>	<i>170</i>
8.2.3	<i>Champ thermique.....</i>	<i>170</i>
8.3	CALCUL MECANIQUE EN ELASTICITE	172
8.3.1	<i>Conditions aux limites du calcul.....</i>	<i>173</i>
8.3.2	<i>Propriétés élastiques du dioxyde d'uranium</i>	<i>173</i>
8.3.3	<i>Contraintes dans le combustible.....</i>	<i>173</i>
8.4	CALCUL MECANIQUE EN ELASTO-VISCOPLASTICITE	177
8.4.1	<i>Propriétés mécaniques de UO₂.....</i>	<i>177</i>
8.4.2	<i>Sollicitations en transitoire de puissance : loi élasto-viscoplastique</i>	<i>178</i>
8.4.3	<i>Comparaison avec les calculs METEOR.....</i>	<i>188</i>
8.4.4	<i>Résumé et retour de réacteur.....</i>	<i>190</i>
8.5	CONCLUSION	193
9	ESSAIS SUR EPROUVETTES IRRADIEES AUX IONS.....	195
9.1	CONDITIONS D'IRRADIATION.....	197
9.2	DEFAUTS MICROSTRUCTURAUX D'IRRADIATION, RELATION AVEC LE COMPORTEMENT MECANIQUE	200
9.3	FLUAGE ET IRRADIATION	203
9.4	ESSAIS DE FLEXION SUR EPROUVETTES IMPLANTEES AUX IONS KR	204
9.5	CONCLUSIONS	206
10	RESUME, CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES.....	209
11	BIBLIOGRAPHIE.....	217

« ... Je veux des vrais rapports... »
L. Casta, Décembre 1999.

1 Introduction générale



1	INTRODUCTION GENERALE
1.1	PRINCIPE ET FONCTIONNEMENT D'UN REACTEUR
1.2	ASSEMBLAGE ET COMBUSTIBLE
1.3	FONCTIONNEMENT EN REGIME DE BASE
1.4	TRANSITOIRES DE PUISSANCE
1.5	SITUATION DE CETTE THESE - IPG

1.1 Principe et fonctionnement d'un Réacteur

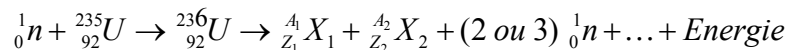
Un réacteur nucléaire est un système de production d'énergie basé sur les réactions nucléaires. Le réacteur comprend essentiellement trois parties :

- ✓ un cœur à base de combustible, qui contient les éléments lourds fissiles ;
- ✓ un modérateur qui ralentit les neutrons ;
- ✓ et un fluide caloporteur dont la circulation évacue la chaleur produite au sein du combustible vers les générateurs d'électricité.

Suivant les technologies utilisées dans les centrales, il existe plusieurs sortes de combustibles, de modérateurs et de caloporteurs.

Le choix du combustible (matériau et design) dépend évidemment du type de réacteur qui lui impose les niveaux de sollicitations thermiques (le caloporteur atteint environ 300°C dans les REPⁱ), mécaniques (pression du caloporteur...), chimiques et neutroniques. Ainsi pour garder sa tenue mécanique, le combustible doit répondre à certains critères. Dans les conditions de température et d'irradiation imposées par le fonctionnement, il doit posséder une bonne stabilité géométrique. Ses propriétés thermiques sont choisies pour assurer le fonctionnement correct du réacteur en évitant la fusion du cœur. Il doit être chimiquement inerte vis-à-vis de l'ensemble des pièces du cœur. Il doit intégrer également toutes les étapes envisagées du cycle du combustible, de sa fabrication au retraitement des parties usagées, pour présenter un coût économiquement acceptable.

Le fonctionnement général d'une centrale, décrit par la Figure 1.1, est basé sur les réactions de fissions. L'atome d'uranium ^{235}U possède une très grande réactivité face aux neutrons lents 1_0n . Sous l'impact d'un neutronⁱⁱ, l'atome se divise en deux atomes plus petits, en expulsant au moins deux neutrons et en libérant de l'énergie :



Généralement, la division du noyau fissile est asymétrique($\frac{2}{3}, \frac{1}{3}$). A chaque fission, le nombre d'atomes augmente ; sous flux, il y a un gonflement du combustible. L'énergie totale dissipée lors de chaque fission est de l'ordre de 200 MeV. Une grande part de l'énergie est dissipée sous forme d'énergie cinétique par les fragments de fission, soit 70 MeV pour les noyaux lourds (I ou Xe) et 100 MeV pour les légers (Br). Chaque neutron émis possède une énergie de 2 MeV environ, ces

ⁱ Réacteur à Eau Pressurisée. Il y a, actuellement, 58 unités électronucléaires de type REP installées en France.

ⁱⁱ L'absorption d'un neutron rend le noyau instable

neutrons devront donc être ralentis (thermalisés) pour déclencher d'autres réactions de fission par absorption. C'est le rôle du modérateur. Il existe également une puissance différée disponible après la fission. Ainsi, lors d'un arrêt du réacteur, une puissance résiduelle continue d'être dégagée, c'est la puissance résiduelle ; d'où l'utilité des piscines de stockage pour laisser refroidir les composants du cœur avant toute manipulation. La fission complète d'un kilogramme d'uranium ^{235}U libère autant d'énergie que la combustion de près de 2 400 tonnes de charbon.

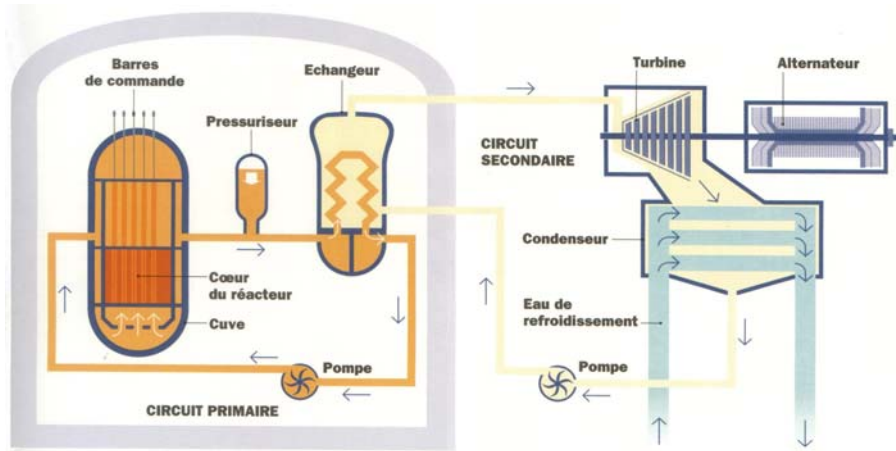


Figure 1.1 - Schéma de fonctionnement d'une centrale nucléaire de type REP (CEA).

Dans le cas des Réacteur à Eau Pressurisée, l'énergie libérée par le combustible est récupérée sous forme de chaleur, dans le cœur du réacteur. L'eau sous pression, qui joue le rôle de caloporteur, évacue cette chaleur à travers le circuit primaire vers les générateurs de vapeur (échangeurs), puis vers les turbines via un circuit secondaire. Les alternateurs couplés aux turbines produisent finalement l'électricité.

Le fonctionnement d'un réacteur a été décrit par (Baron 1999b). Le circuit primaire est constitué de trois ou quatre boucles débitant $20\,000\text{ m}^3/\text{h}$. L'eau s'échauffe de 35°C entre le bas et le haut du cœur du réacteur, elle sort du cœur à environ 320°C . L'ensemble du circuit primaire est confiné dans une enceinte en béton. Les générateurs de vapeur, disposés sur chaque boucle de refroidissement, sont formés par un réseau de près de 4 500 tubes dans lesquels circule l'eau du circuit primaire. L'eau du circuit secondaire, pressurisée à 60 bars ruisselle sur ces tubes, ce qui provoque son évaporation. Après sa détente dans les turbines, la vapeur est refroidie au contact d'un dernier circuit ouvert d'eau « naturelle » (rivière ou mer). Avant son retour à la nature, cette eau peut être refroidie dans les tours de réfrigération.

Cette conception présente plusieurs avantages. En effet, il existe trois barrières de protection : la gaine entourant le combustible, le circuit primaire et l'enceinte de confinement. Mais, surtout, il n'y a pas de contact direct entre les deux premiers circuits de refroidissement avec l'environnement. Ce type de centrale ne peut donc rejeter en fonctionnement normal aucune matière active dans l'environnement.

1.2 Assemblage et combustible dans les REP

La Figure 1.2 représente un exemple typique d'assemblage REP composé de 264 crayons sur un réseau carré de 17×17 , avec un tube d'instrumentation central et une grappe de crayons de commande (absorbant, poison consommable). Le crayon combustible est formé d'une gaine en alliages de zirconium fermée à chaque extrémité par des bouchons soudés, pour constituer la première barrière étanche de confinement. Les pastilles de combustible sont maintenues jointives par

un ressort en Inconel, créant un volume libre permettant l'expansion des gaz de fission. Cette géométrie cylindrique permet à la gaine de supporter les contraintes primaires (pression du caloporteur et des gaz de fission). Les crayons sont maintenus dans un squelette métallique ($20 \times 20 \text{ cm}^2$) de grilles intermédiaires en alliage de zirconium. Le tout est encadré par deux plaques en acier inoxydable. Il est possible d'insérer dans cet assemblage 24 tubes-guides dans lesquels coulisent les barres de contrôle. Le réacteur fonctionne par cycle d'un an environ, qui devrait être augmenté à 18 mois dans les nouveaux types de gestion du cœur. Les assemblages combustibles restent au moins 3 cycles en réacteur. Lors de chaque arrêt, il y a un réarrangement du cœur avec un déchargement des assemblages usagés, chargement de combustible neuf, et redistribution d'assemblages non totalement irradiés. Le crayon doit répondre à certaines bases de conception et à des règles de sûreté, surtout dans le but de garantir in fine son étanchéité totale pour éviter un dispersément de matière active dans le circuit primaire.

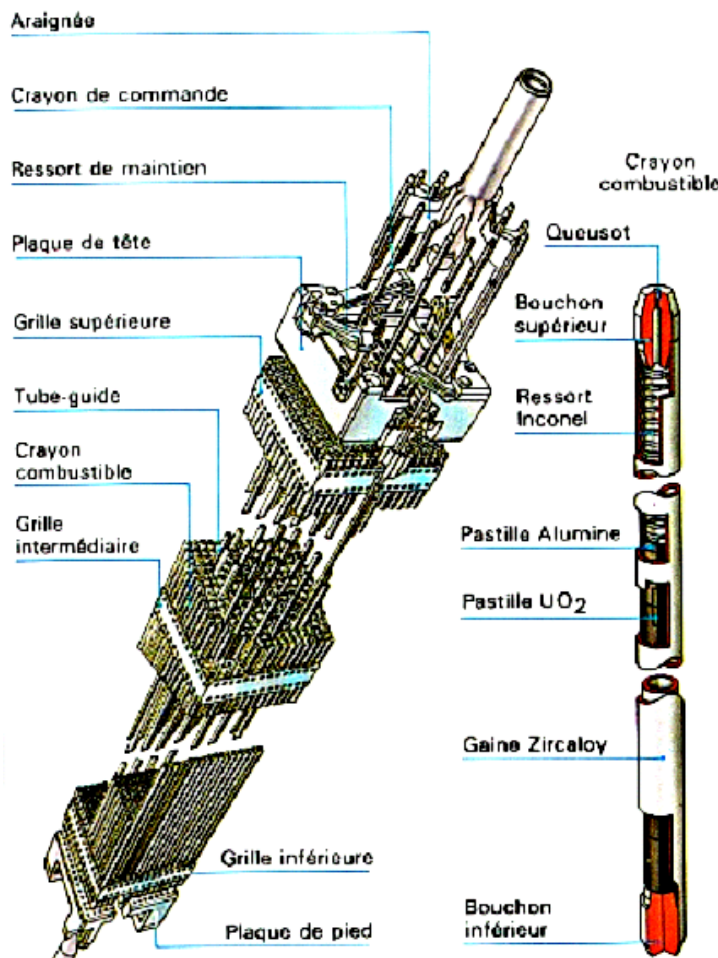


Figure 1.2 - Assemblage REP et crayon combustible

(COGEMA 1994, FRAMATOME 1998)

L'amiral Rickover a introduit le zirconium dans l'industrie nucléaire. Il a sélectionné un alliage ayant une faible section de capture des neutrons thermiques, une bonne résistance à la corrosion aqueuse, une résistance mécanique suffisante à des températures moyennes et enfin ne pas être trop sensible à l'irradiation. Aujourd'hui les alliages Zircaloy sont couramment utilisés dans les centrales nucléaires, le Zircaloy 2 (Zr, Sn, Fe, Cr, Ni, O) dans les réacteurs à eau bouillante et surtout le Zircaloy 4 (Zr, Sn, Fe, Cr, O) pour les réacteurs à eau sous pression (Frechinet 2001). Dans les REP les tubes de gainage mais aussi les tubes guides et les grilles sont fabriqués à partir de cet alliage.

En France, la matière fissile se présente sous forme de pastilles céramiques cylindriques, de 8 mm de diamètre pour une hauteur de 13 mm. Des évidements sont également ménagés en

extrémités des pastilles, comme illustrés sur la Figure 1.3. Le combustible est soit de l'oxyde d'uranium enrichi UO_2 , soit des oxydes mixtes d'uranium et de plutonium (dits MOX pour mixed oxides). Le crayon est fermé sous une légère pression (25 bars à froid) d'hélium, permettant de contrebalancer la pression externe du caloporteur sur la gaine, donc de retarder la fermeture du jeu existant entre la pastille et la gaine. La longueur des crayons dépend des puissances des réacteurs et les caractéristiques principales sont rappelées dans le Tableau 1.1. Ainsi dans un réacteur de 900 MWe (Fessenheim, Gravelines), 272 pastilles sont empilées dans un crayon. Pas moins de 11 273 856 pastilles d'oxyde d'uranium sont ainsi réunies dans le cœur d'une telle centrale.

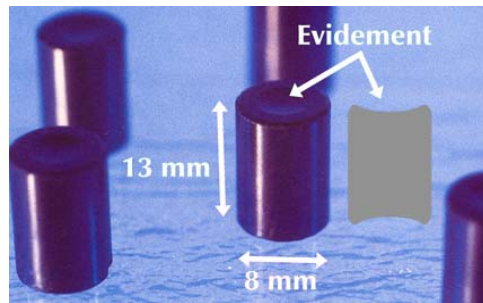


Figure 1.3 - Pastilles de combustible de type REP.

Le combustibleⁱⁱⁱ a une place à part dans la multitude de matériaux utilisés dans les centrales nucléaires. Il constitue la partie active et consommable du réacteur. Economiquement, il y a un fort intérêt à le changer le moins souvent possible pour en augmenter son taux de combustion et donc son temps de séjour en réacteur. Pour fixer les idées, la prolongation d'un cycle d'un assemblage de type REP permet un gain d'environ 60 k€ (0,4 MF) par assemblage (Baron 2002).

Type de réacteur	900 MWe	1 300 MWe
Nombre d'assemblages	157	193
Réseau	17 x 17	
Nombre de crayons combustibles par assemblage	264	
Gaine (mm)		
- Diamètre extérieur	9,5	
- Epaisseur	0,57	
Pastille (mm)		
- Diamètre	8,2	
- Hauteur	13,5	
Longueur (mm)		
- Colonne combustible	3 658	4 267
- Crayon	3 852	4 488
- Assemblage	4 058	4 796
Section de l'assemblage (mm)	214 x 214	
Poids de l'assemblage (mm)	649	760
Nombre de crayons dans les grappes de commande	24	
Enrichissement		
- UO_2 (en ^{235}U)*	3,7	3,6
- MOX (en Pu)**	5,3	-

(Bailly 1996a)

* Rechargement par quart de cœur

** Rechargement hybride : quart de cœur (UO_2) et tiers de cœur en MOX

Tableau 1.1 - Caractéristiques des assemblages REP.

ⁱⁱⁱ Un peu de terminologie : dans le domaine nucléaire, le terme "combustible" est souvent utilisé, par abus de langage, pour désigner les différentes structures correspondant à différentes échelles (grappe ou assemblage, crayon ou élément, pastille). Dans la suite de ce mémoire, le terme "combustible" désignera toujours la céramique fissile, à savoir le plus souvent UO_2 .

1.3 Fonctionnement en régime de base dans les REP

Les conditions de fonctionnement sont, en régime normal :

- ✓ la pression du caloporteur (eau) : 155 bars ;
- ✓ la température du caloporteur, qui varie de 286°C à l'entrée du cœur et 323°C à la sortie pour un réacteur de 900 MWe ;
- ✓ la température externe de la gaine qui se situe au maximum à 350°C.

Le combustible fonctionne à une puissance linéique moyenne d'environ 220 W/cm en régime de base.

Le jeu initial à froid entre la gaine et la pastille va se combler au fur et à mesure de la vie en réacteur. A la mise en température et en pression du réacteur, lors de la première montée en puissance, la pastille se fracture (6 à 8 fragments radiaux). Le jeu initial autorise le déplacement des différents fragments. Il y a augmentation du diamètre apparent de la pastille. Au cours de l'irradiation, la gaine flue vers la pastille sous l'action de la pression différentielle entre le caloporteur et les gaz contenus dans le crayon (environ 60 bars à chaud). Mais, surtout, la pastille gonfle sous l'effet de l'irradiation, son diamètre augmente d'environ 0,1 % par 10 GWj/t. Le jeu entre pastille et gaine diminue donc pour conduire, après environ 10 000 heures de fonctionnement, généralement au début du deuxième cycle, à un contact intime entre pastille et gaine. Il s'opère alors un réarrangement des fragments céramiques vers l'intérieur du crayon. Puis le gonflement du combustible impose les sollicitations à la gaine, engendrant des contraintes de traction tangentielle dans le tube. Ces contraintes augmentent jusqu'à atteindre un équilibre vis-à-vis des pressions externes du caloporteur. Le crayon est alors dit « conditionné » à ce niveau de puissance, qui correspond en régime de fonctionnement de base à environ 200W/cm.

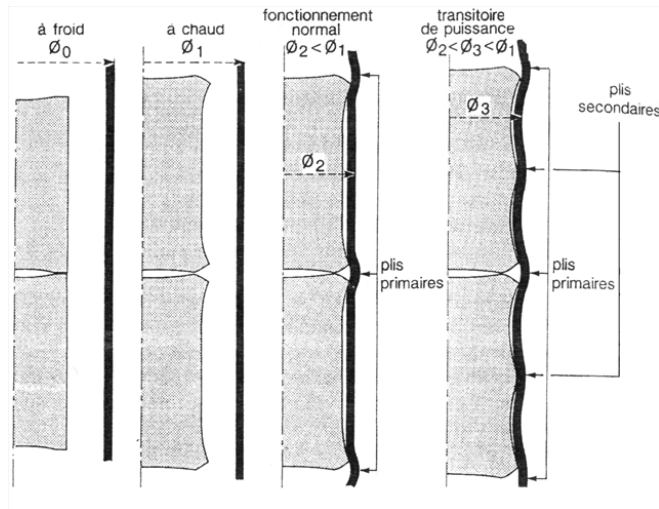


Figure 1.4 - Représentation schématique de l'évolution du jeu entre les pastilles et la gaine en réacteur

(Guerin 1996)

Sous l'effet du fort gradient thermique, par dilatation thermique différentielle, la pastille se déforme en « diabolo ». Le contact entre l'oxyde et le Zircaloy s'opère en premier au droit des plans inter-pastilles. Ce phénomène augmente très nettement les contraintes subies par la gaine, et fait apparaître un réseau de points anguleux. Par la suite la gaine vient se plaquer sur la céramique sur toute sa longueur. Il se forme alors sur la gaine, au niveau des interfaces pastille-pastille, des plis dits « primaires », schématisés sur la Figure 1.4. Ces plis peuvent localement faire augmenter le diamètre de la gaine de 40 µm, comme le montre le calcul illustré par la Figure 1.5, pour un séjour en réacteur de deux cycles.

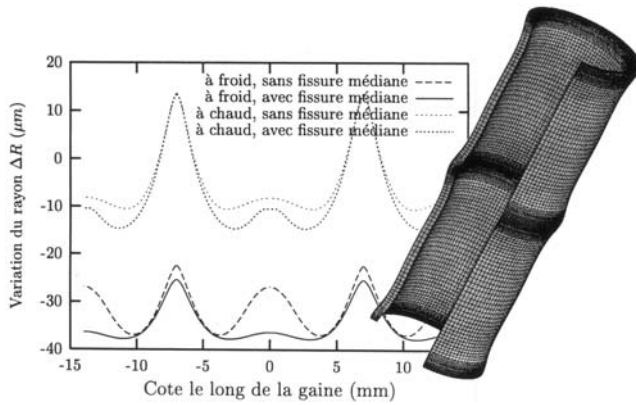


Figure 1.5 - Profils obtenus en fin de rampe de puissance (à chaud) puis au retour à froid

(Diard 2001)

1.4 Transitoires de puissance

La puissance du réacteur doit pouvoir s'adapter à la demande du réseau. Le combustible subit alors des transitoires de puissance (Baron 1999a) :

- ✓ lors d'une remontée de puissance après un arrêt de manutention,
- ✓ lors d'un suivi de charge avec variations cycliques lentes mais de grandes amplitudes (à la demande du dispatching),
- ✓ lors d'une adaptation automatique de la puissance à la demande du réseau (pour maintenir l'équilibre production/consommation), ces variations étant très rapides.

A ces cas « classiques » de changements de puissance, il faut ajouter les incidents de fonctionnement. Par exemple, si les systèmes de sécurité se déclenchent suite à une anomalie, cela peut se traduire par une variation rapide de grande amplitude.

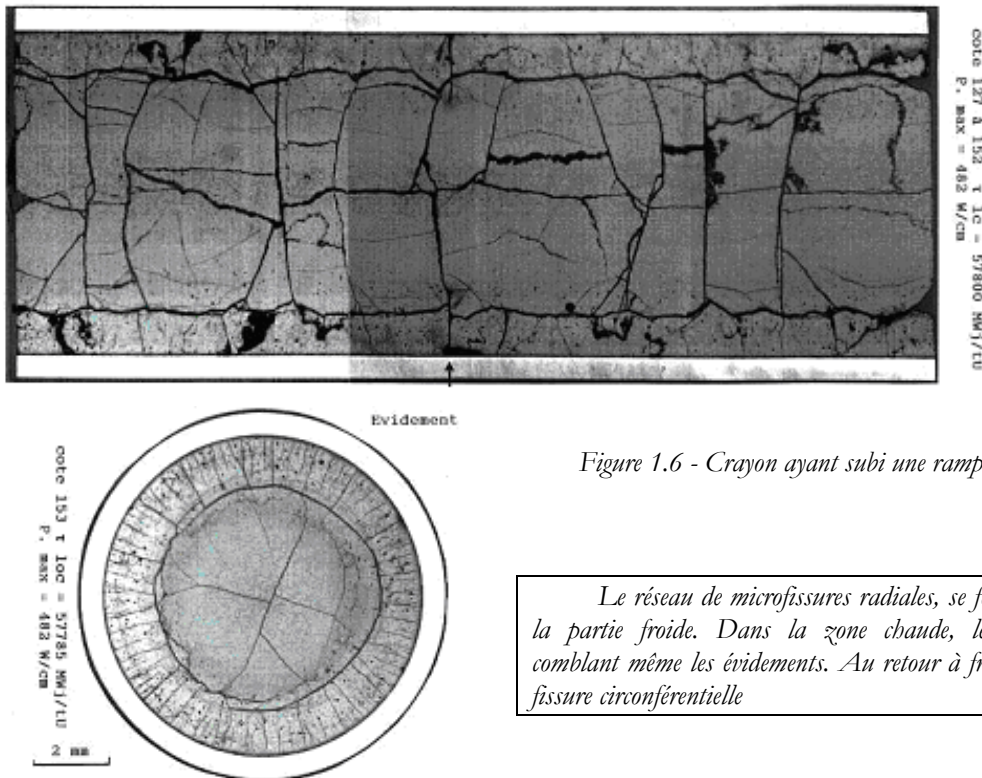


Figure 1.6 - Crayon ayant subi une rampe de puissance.

Le réseau de microfissures radiales, se forme à chaud dans la partie froide. Dans la zone chaude, le combustible flue comblant même les évidements. Au retour à froid il se forme une fissure circonférentielle

Pendant ces rampes de puissance, des plis secondaires peuvent apparaître à la hauteur des plans médians des pastilles. En fin de rampe, les températures atteintes permettent à la partie centrale du combustible de fluier. Un réseau de fissures radiales se forme alors dans les zones plus froides qui ne peuvent pas accommoder les contraintes par des déformations viscoplastiques. Lors du retour à froid l'incompatibilité de déformations crée une fissure circonférentielle illustrée par la Figure 1.6.

Au cours de ces rampes, les contraintes dans la gaine augmentent fortement au niveau des plis primaires, ce qui peut conduire à la fissuration de la gaine par une localisation des déformations^{iv}, éventuellement assistée par des phénomènes de corrosion sous contraintes (CSC). Un exemple obtenu en laboratoire est montré sur la Figure 1.7. On observe une forte corrosion interne de la gaine, visible par exemple sur la Figure 1.8. De plus l'atmosphère interne du crayon s'y prête, la réaction de fission étant oxydante.

Pour éviter toute rupture de la gaine, il faut relaxer au plus les contraintes, et répartir au mieux les déformations dans le combustible. La microfissuration de la céramique va dans ce sens. Mais c'est aussi les propriétés de fluage de l'oxyde d'uranium qui peuvent intervenir, dans les zones les plus chaudes (centre de la pastille). La périphérie de la pastille, dont les caractéristiques sont différentes du cœur, joue un rôle important dans le contact pastille-gaine et dans l'homogénéisation des déformations le long de la gaine. Ses propriétés mécaniques peuvent créer une « zone tampon » intermédiaire plus facilement déformable favorisant la relaxation des contraintes.

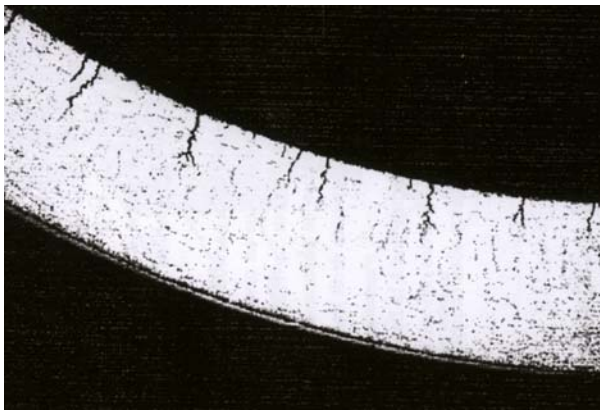


Figure 1.7 - Fissuration par corrosion sous contraintes d'une gaine de Zircaloy.

(Yaggee 1980)

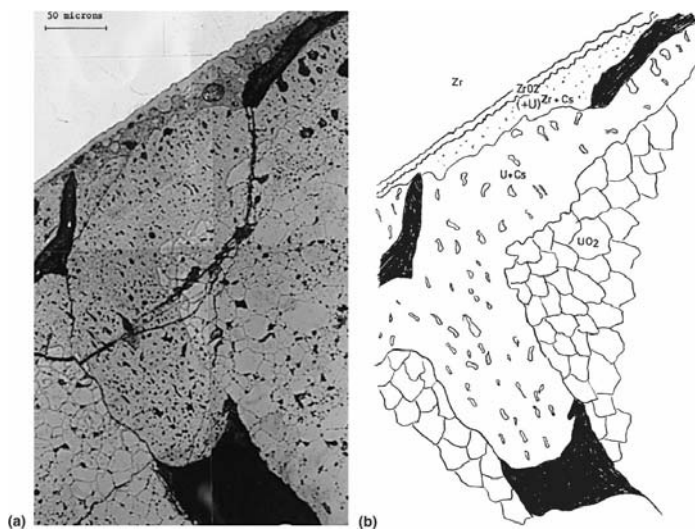


Figure 1.8 - Microstructure de l'interface UO_2 -Zircaloy : formations de composés intermédiaires complexes $[\text{U}, \text{Cs}, \text{O}, \text{Zr}]$ en cas de surchauffe.

(a), mise en évidence de la couche de zircon
(b) par cartographie X.

(Yagnik 1999)

^{iv} Notamment au niveau des points anguleux, que sont les plans inter pastilles et les fissures débouchantes de la céramique.

1.5 Situation de cette thèse - IPG

La Figure 1.9 illustre les différentes phases de sollicitations de la gaine au cours d'un fonctionnement de base d'un réacteur. Après conditionnement, le crayon subit une rampe de puissance. Les contraintes maximales d'Interaction Pastille-Gaine IPG sont atteintes en fin de rampe.

EDF cherche à prolonger le temps de séjour en réacteur des assemblages. Cette prolongation, de trois à quatre ans environ, nécessite de bien maîtriser le comportement des crayons. Parallèlement l'exploitant doit assurer l'intégrité des gaines tout au long de leur séjour en cœur, et ce dans toutes les conditions de fonctionnement. Le risque de rupture des gaines impose des seuils de puissance et de montée de puissance, limitant la manœuvrabilité des centrales. Il faut donc acquérir une meilleure connaissance des mécanismes d'IPG, notamment des phénomènes sources de contraintes et de ceux permettant de relaxer ces sollicitations. Le but est d'obtenir des lois capables de modéliser le comportement crayon en réacteur.

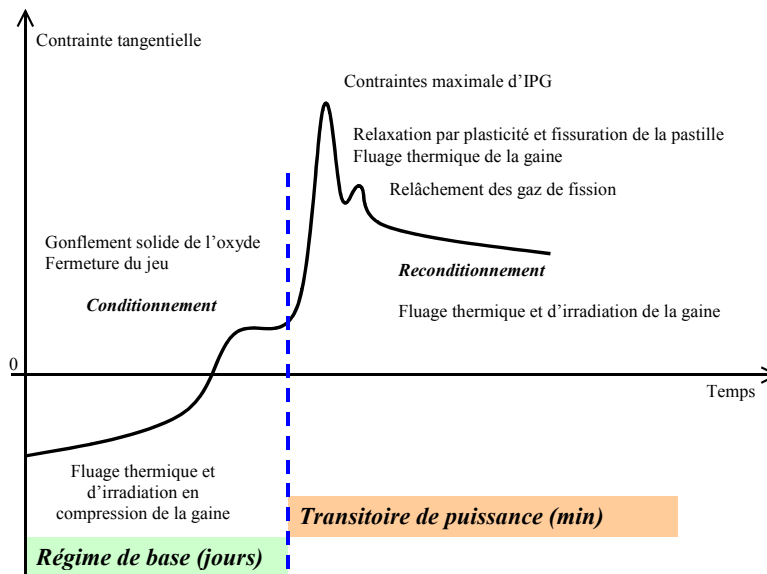


Figure 1.9 - Sollicitations vues par la gaine.

Dans ce mémoire, il sera question du comportement mécanique de l'oxyde d'uranium. Plusieurs mécanismes sont susceptibles de relaxer les contraintes subies par la gaine à différentes échelles de temps.

Pour les mécanismes lents, les fluages dits thermiques et d'irradiation jouent un rôle sur les longues périodes d'utilisation. En régime de base, étant données les températures considérées ($< 1\,200^{\circ}\text{C}$), la céramique flue très lentement. Par contre, lors des transitoires de puissance ou dans des conditions incidentelles, les mécanismes sont plus rapides. Dans ces conditions de température et de contrainte, la composante thermique du fluage devient significative.

Par exemple Guerin (Guerin 1996) fournit, sur la Figure 1.10, les vitesses de fluage de combustibles sous irradiation à différentes températures. Il faut noter que ces résultats présentés ici sur des oxydes mixtes sont similaires à ceux que l'on pourrait obtenir sur UO_2 . En dessous de $1\,200^{\circ}\text{C}$ les déformations sont indépendantes de la température. Pour ces faibles températures, la céramique peut se déformer grâce au fluage d'irradiation. Lorsque la température s'élève, le fluage est fonction de ce paramètre ; il est thermiquement activé. A plus haute température, la composante thermique du fluage est prédominante.

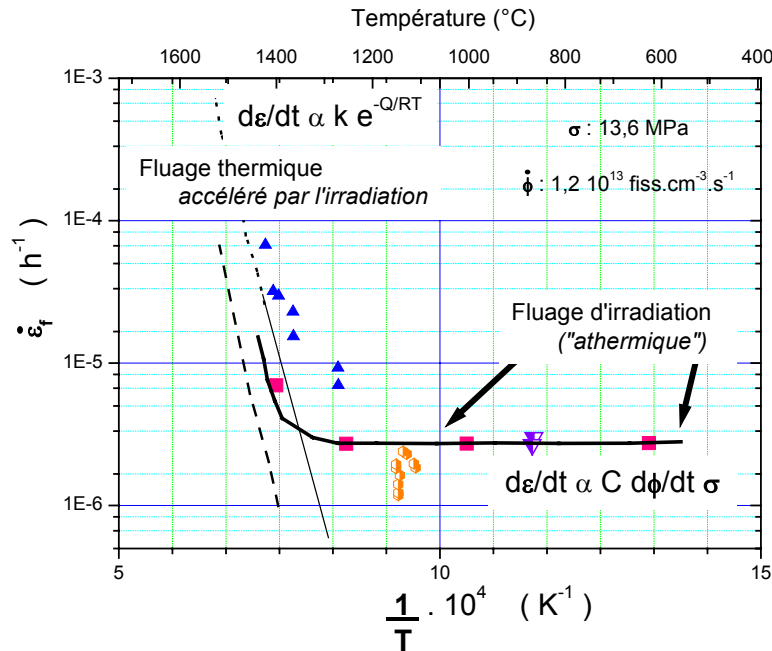


Figure 1.10 - Vitesses de fluage d'un oxyde mixte dans les domaines thermique et athermique. (Guerin 1996)

Nous proposons donc de caractériser le comportement du dioxyde d'uranium dans ces conditions de sollicitations rapides de transitoire de puissance.

La problématique générale dans laquelle se situe cette étude est récapitulée par la Figure 1.11. En résumé, le fonctionnement même du réacteur a des conséquences directes sur le comportement du combustible UO_2 , notamment lors des différentes rampes de puissance. L'exploitant doit assurer l'intégrité de l'ensemble des crayons quelles que soient les conditions de sollicitation : le taux de rupture toléré doit être inférieur à 10^{-6} . Pour cela, il doit notamment connaître les propriétés viscoplastiques du combustible, et disposer de lois capables de décrire son comportement dans le but de simuler le fonctionnement des crayons en cœur du réacteur.

Le but de cette thèse a été de contribuer à la caractérisation du fluage du dioxyde d'uranium dans des conditions de transitoires de puissance. Pour cette étude nous avons développé et utilisé un dispositif spécifique d'essais mécaniques.

Le plan général de ce mémoire est résumé par la Figure 1.12.

Avant de relater notre propre travail, il nous a paru nécessaire, dans un premier chapitre, de mieux décrire les sollicitations thermiques et neutroniques subies par le combustible dans le cœur du réacteur. Nous verrons que leurs effets ne sont pas négligeables et changent complètement le comportement initial de UO_2 . Ensuite un second chapitre sera consacré à une étude bibliographique de la céramique nucléaire, plus particulièrement de ses propriétés mécaniques, le plus souvent obtenues à partir d'essais de compression. Le troisième chapitre aura pour but de mieux définir les sollicitations thermomécaniques subies par le combustible lors de transitoires de puissance, grâce à une simulation numérique simple.

Le constat issu de ces trois premiers chapitres est que l'essai de flexion semble adapté pour se rapprocher des sollicitations générées par une transitoire de puissance. Aussi, le chapitre suivant décrit le dispositif expérimental spécifique que nous avons développé au laboratoire. Il s'agit d'un essai de flexion trois points à haute température sous atmosphère contrôlée, permettant de travailler sur des éprouvettes prélevées directement dans des pastilles de combustible. Grâce à cet outil, nous avons caractérisé le comportement de UO_2 : le cinquième chapitre décrit l'ensemble des résultats obtenus et les compare avec les données bibliographiques disponibles concernant le fluage stationnaire du matériau.

Le choix d'un modèle mécanique et l'identification des différents paramètres sont traités dans le sixième chapitre. La loi obtenue est ensuite utilisée dans le chapitre 7 pour effectuer un calcul numérique des contraintes créées dans une pastille combustible par une transitoire de puissance, en intégrant le fluage.

Enfin le dernier chapitre ouvre des perspectives à notre travail par la mise en évidence de l'influence d'une irradiation aux ions sur la loi de fluage.

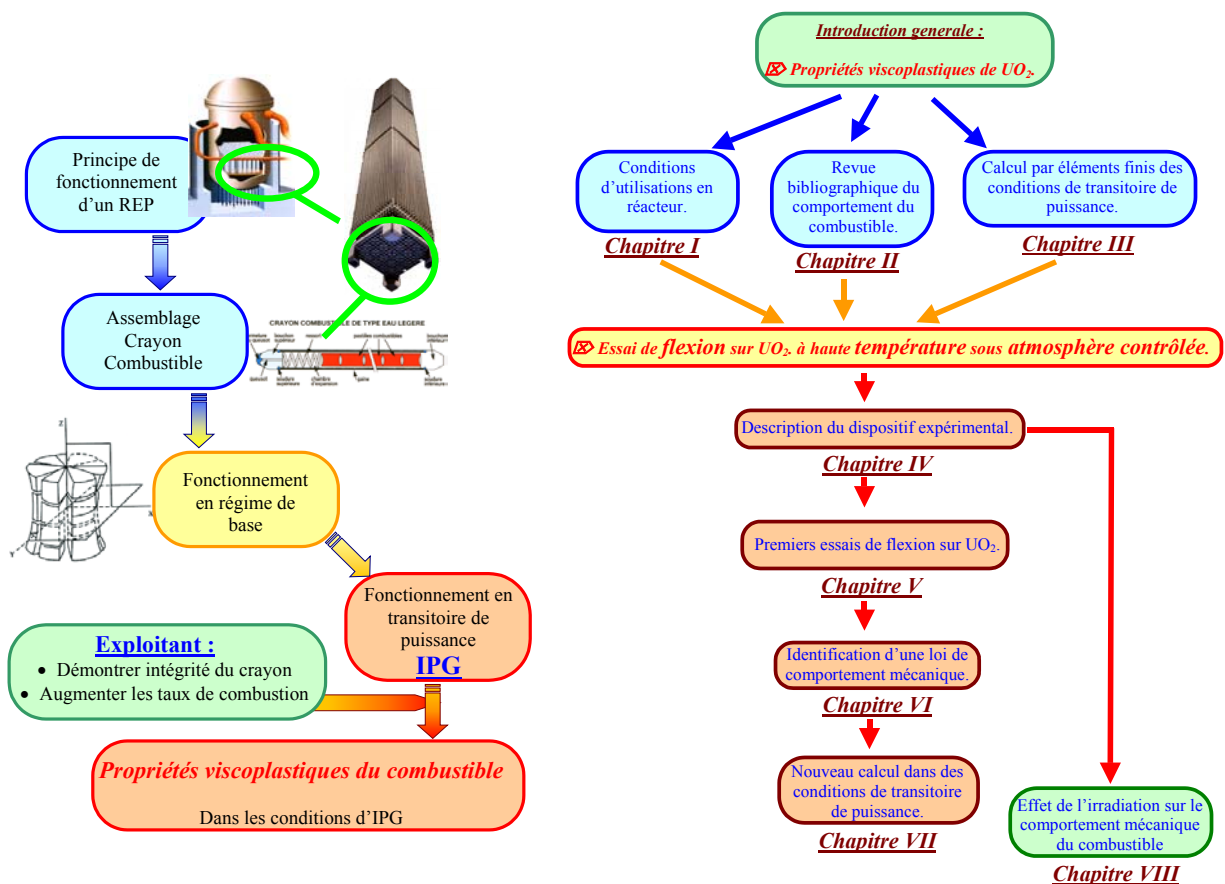
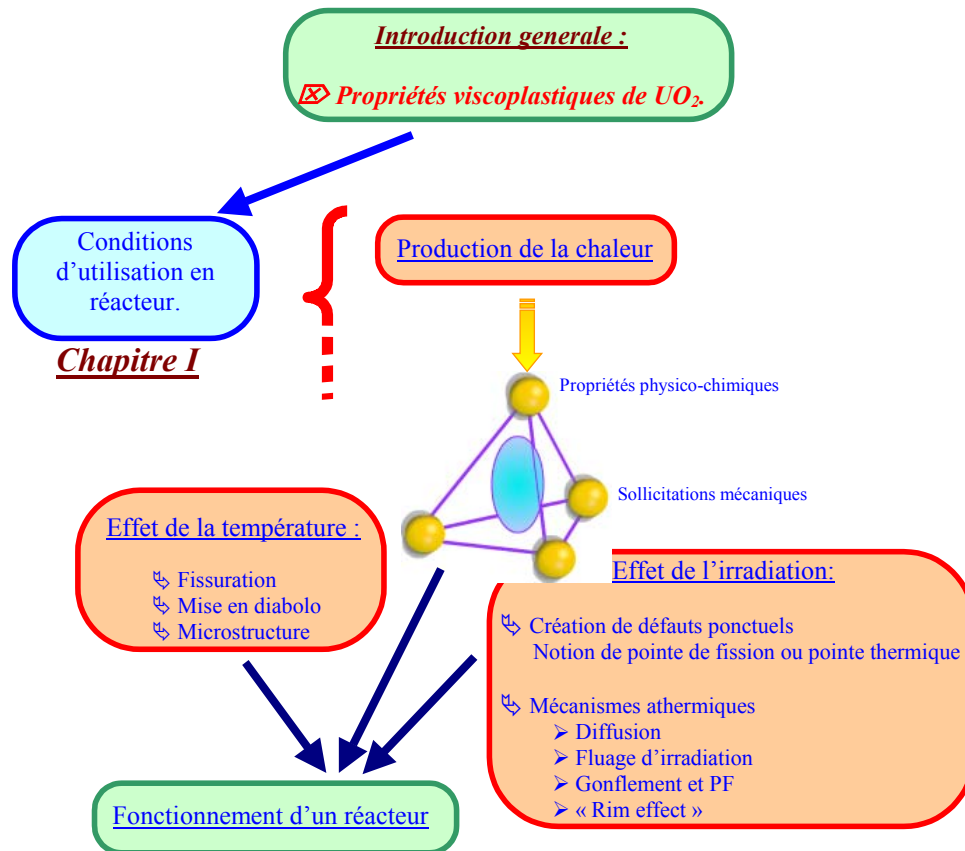


Figure 1.11 - Problématique de notre étude.

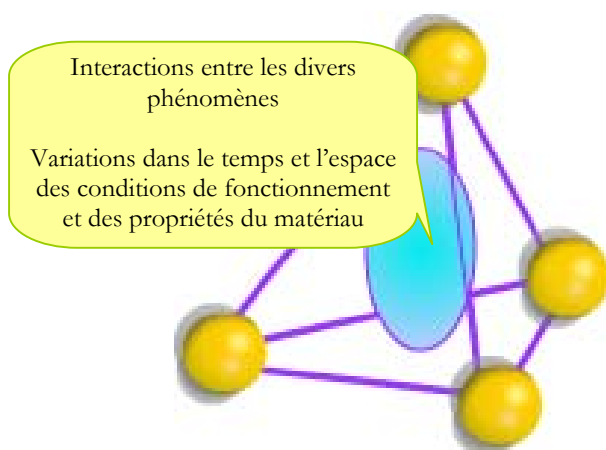
Figure 1.12 - Plan suivi dans ce mémoire.

2 Conditions de fonctionnement en Réacteurs à Eau Pressurisée





- 2 CONDITIONS DE FONCTIONNEMENT EN REACTEUR REP
 - 2.1 PRODUCTION ET EVACUATION DE LA CHALEUR
 - 2.2 EFFETS DE LA TEMPERATURE
 - 2.3 EFFETS DE L'IRRADIATION
 - 2.3.1 Création de défauts
 - 2.3.2 Diffusion
 - 2.3.3 Fluage
 - 2.3.4 Gonflement et produit de fissions
 - 2.3.5 Rim effect
 - 2.4 FONCTIONNEMENT DU REACTEUR



Phénomènes physico-chimiques.

Par exemple pour les aspects les plus évidents, il y a une modification de la chimie du combustible sous l'effet combiné de la température et de l'irradiation : formation de produits de fission et de plutonium ; puis redistribution des composants U et Pu par diffusion ; et changement de stœchiométrie. Il peut y avoir également des réactions entre le combustible et le Zircaloy, voire entre le combustible et le caloporteur en cas de rupture de la gaine.

Phénomènes mécaniques.

Les phénomènes rencontrés peuvent être complexes et/ou faire interagir plusieurs composants des assemblages. Le gradient thermique important dans le combustible provoque sa fissuration dès la première montée en puissance du cœur. La gaine est soumise à des contraintes dites primaires (pression du caloporteur, pression interne due à l'hélium et aux gaz de fission) et secondaires (gradient de température, gonflement d'irradiation). Il y a interaction mécanique (et chimique) entre le combustible et la gaine en régime de base au bout de deux cycles environ, particulièrement lors des transitoires de puissance. A une échelle plus importante, les assemblages sont soumis à divers types de sollicitations mécaniques : poussées hydrauliques, vibrations, interactions.

Effets de l'irradiation.

Le flux de neutrons déclenche les réactions nucléaires et est donc à l'origine du dégagement calorifique ; mais l'irradiation implique également d'autres effets sur l'oxyde. Les produits de fission solides résultants engendrent dans un premier temps un gonflement de la céramique et un changement de ses propriétés physico-chimiques. Puis, lors du relâchement des produits de fission gazeux, ils augmentent la pression interne dans la gaine. Mais plus directement l'irradiation modifie les propriétés mécaniques (endommagement) et la géométrie des matériaux de l'assemblage : ductilité, durcissement, gonflement, fluage d'irradiation.

Pendant son séjour en réacteur, le combustible subit de nombreuses transformations dues à différents phénomènes physiques, mécaniques et chimiques liés à la température et au gradient thermique élevés, ainsi qu'à l'irradiation. Tous ces phénomènes intervenant simultanément interagissent fortement les uns avec les autres (Guerin 1996). En guise d'introduction à cette partie, nous rappelons les sollicitations vues par le combustible dans un réacteur, qui feront par la suite l'objet de paragraphes plus détaillés. Les phénomènes et mécanismes rencontrés sont très complexes, et sont le sujet de nombreuses études spécifiques. Il est hors de question ici d'exposer toutes les théories, mais de proposer un bref descriptif des principaux phénomènes pouvant avoir des conséquences directes sur le combustible. Le lecteur souhaitant des approfondissements pourra en trouver dans quelques ouvrages de références, notamment (Bailly 1996c).

Une des difficultés de l'étude des combustibles résulte de l'interaction entre tous ces phénomènes, évolutifs au cours du temps (variations lentes comme celles qui sont dues à l'épuisement, ou plus rapides lors de variations de puissance) et dans l'espace (effet de peau notamment) des caractéristiques du matériau.

2.1 Production et évacuation de la chaleur

Avant de décrire ces phénomènes, il nous paraît nécessaire d'exposer la manière dont est produite et évacuée la chaleur au sein du combustible. La fission d'un atome d'uranium en deux produits de fission (PF) s'accompagne d'un dégagement d'énergie d'environ 200 MeV. La quasi-totalité de cette énergie est récupérée sous forme d'énergie cinétique puis calorifique. Les fragments de fission fortement ionisés parcourent environ 8 μm avant d'être arrêtés. En fin de parcours, les produits de fission possèdent encore une faible énergie résiduelle provoquant des chocs élastiques et déplaçant les atomes de l'oxyde. 25 000 paires de Frenkel sont créées à chaque fission d'un atome ^{235}U ; la majeure partie de celles-ci se recombine instantanément mais il subsiste environ 5 000 d'entre-elles, laissant une trace de la pointe de fission.

Bien que produit ponctuellement dans le combustible, à une échelle macroscopique le dégagement calorifique peut être considéré comme généré uniformément en volume. Il est possible de calculer le champ thermique dans le combustible, en imposant les conditions aux limites de refroidissement par le caloporteur via la gaine : une représentation schématisée de ce calcul est fournie par la Figure 2.1. Vu la géométrie, le transfert thermique est essentiellement radial.

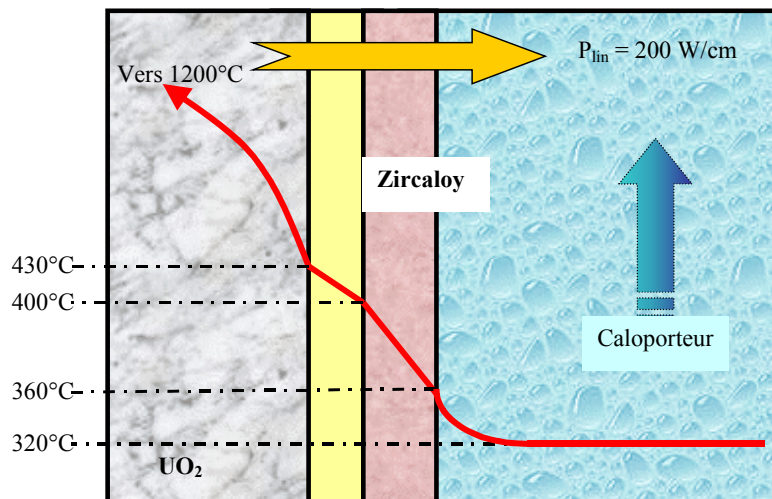


Figure 2.1 - Champ thermique radial dans un crayon de combustible REP pour une puissance linéique de 200 W/cm.

En partant du fluide caloporteur, il y a tout d'abord une différence de températures d'environ 40°C entre la surface externe de la gaine et le caloporteur, associée au transfert par convection naturelle et/ou forcée. Le champ de température dans la gaine est quasi linéaire, et la différence de température entre les surfaces interne et externe est fonction de la puissance P_{lin} reçue et de la géométrie du crayon :

$$\Delta T = T_{IG} - T_{EG} = \frac{P_{lin}}{2\pi\lambda_{Gaine}} \ln\left(\frac{r_{EG}}{r_{IG}}\right)$$

où r_{EG} et r_{IG} sont les rayons extérieur et intérieur de la gaine. Le transfert de chaleur entre la céramique et la gaine s'effectue au travers d'une lame de gaz (h étant le coefficient de convection), tout du moins en début d'utilisation, tant que le jeu entre la pastille et la gaine n'est pas comblé :

$$h(T_{IG} - T_s) = \frac{P_{lin}}{2\pi r}$$

où T_s et T_{IG} sont respectivement la température périphérique du combustible et la température de surface interne de la gaine. En utilisant les équations de la chaleur, l'équation thermique pour le combustible s'écrit en régime permanent (Chauvin 1996) :

$$P_{vol} + \frac{1}{r} \frac{d}{dr} \left(\lambda r \frac{dT}{dr} \right) = 0$$

où P_{vol} est la puissance volumique. La conductivité thermique λ du matériau varie avec la température. Pour résoudre cette équation, l'intégrale de conductivité I est introduite :

$$I = \int_{T_1}^{T_2} \lambda(T) dT$$

Il vient alors :

$$I = \int_{T_{surface}}^{T_{coeur}} \lambda(T) dT = \frac{P_{lin}}{4\pi}$$

où P_{lin} est la puissance linéique. Connaissant alors I et la température de surface, il est possible d'en déduire les profils thermiques radiaux illustrés par la Figure 2.2. Ce calcul montre que la température à cœur d'une pastille REP ne dépasse pas 1 300°C en fonctionnement nominal ($P_{lin} < 300 \text{ W/cm}$). La température de surface de la pastille dépend beaucoup moins de la puissance dégagée, et se situe autour de 450°C.

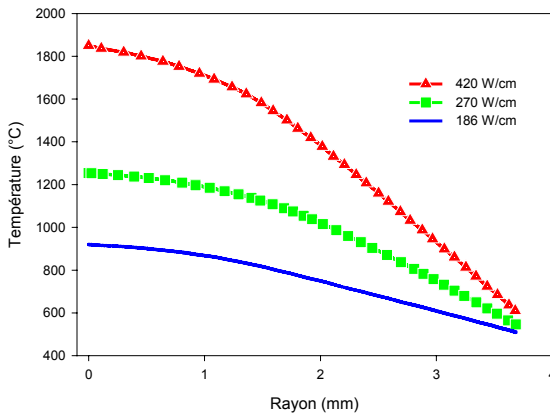


Figure 2.2 - Profils de températures dans une pastille de combustible REP en fonctionnement à différents niveau de puissance.

2.2 Effets de la température

Les températures, et surtout les gradients associés, vont impliquer de nombreux changements géométriques, microstructuraux et physico-chimiques dans le combustible. La première montée en température de la céramique impose des dilatations thermiques différentielles internes et également vis-à-vis de la gaine. Les déformations sont plus importantes dans le combustible que dans la gaine. Le jeu à chaud est inférieur au jeu initial. La mise en température du réacteur implique également une augmentation de la pression interne du crayon. Elle est estimée à chaud à environ 70 bars, qui permettent de compenser partiellement la pression de 150 bars imposée par le caloporteur sur la gaine.

Le gradient thermique engendre des contraintes internes dans l'oxyde, la périphérie des pastilles se trouve mise en tension par le cœur plus chaud et plus dilaté. Des calculs simples (approximation de contraintes planes) permettent de calculer les contraintes principales maximales d'après Guerin 1996 :

$$\sigma_{\max} = \underbrace{\frac{E\alpha}{2(1-\nu)}}_{\substack{T_C, \text{ température à coeur} \\ T_S, \text{ température de surface} \\ E, \text{ module élastique} \\ \alpha, \text{ coefficient de dilatation} \\ \nu, \text{ coefficient de Poisson}}} (T_C - T_S).$$

L'oxyde d'uranium possède, aux températures où il est ici sollicité, un comportement fragile : une fissuration apparaît dès que les contraintes atteignent la résistance à la rupture, et l'écart de température critique s'exprime alors :

$$T_C - T_S > \frac{2(1-\nu)}{E\alpha} \sigma_{rup}.$$

La contrainte à rupture en flexion est estimée par le CEA à environ 130 MPa (Bailly 1996a), ce qui signifie que la pastille est susceptible de se fissurer lorsque $T_C - T_S$ dépasse 100°C, condition largement atteinte dès le début de la première montée en puissance du réacteur. Un exemple de réseau de fissures est représenté sur la Figure 2.3.

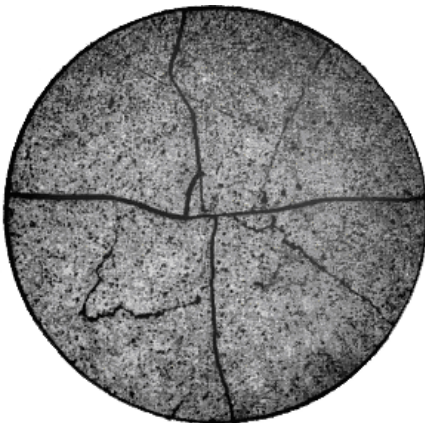


Figure 2.3 - Macrographie d'une pastille REP fissurée par le gradient thermique, après un cycle d'irradiation.

(CEA)

Des études menées par CEA et EDF montrent qu'il y a peu d'évolution du nombre de fissures avec le temps d'irradiation lorsque le réacteur reste en régime de base. Pour caractériser cette

fissuration, il suffit donc de décrire au mieux la première montée en puissance. Ainsi, des calculs ont été réalisés pour déterminer le nombre le plus probable de fissures lors de cette rampe (Diard 2001). Ces simulations ont été réalisées sur des structures 3D, où le nombre de fragments est augmenté jusqu'à l'obtention d'une contrainte acceptable par la céramique. Cette démarche est illustrée par la Figure 2.4. Sur la partie (d) de la figure, le calcul produisant des contraintes irréalistes car trop élevées, une fissuration supplémentaire est simulée, qui a pour effet de réduire cette valeur. Les fissures sont majoritairement radiales et produisent 6 à 8 fragments. Ce calcul met aussi en évidence une fracturation perpendiculaire à l'axe de la pastille. Au cours du refroidissement (e), le calcul montre la possibilité d'une fracturation circonférentielle, après déformation du combustible au niveau des évidements. En interactions entre eux, les fragments se déplacent les uns par rapport aux autres. C'est le mécanisme dit de relocalisation. La pastille augmente donc de diamètre apparent.

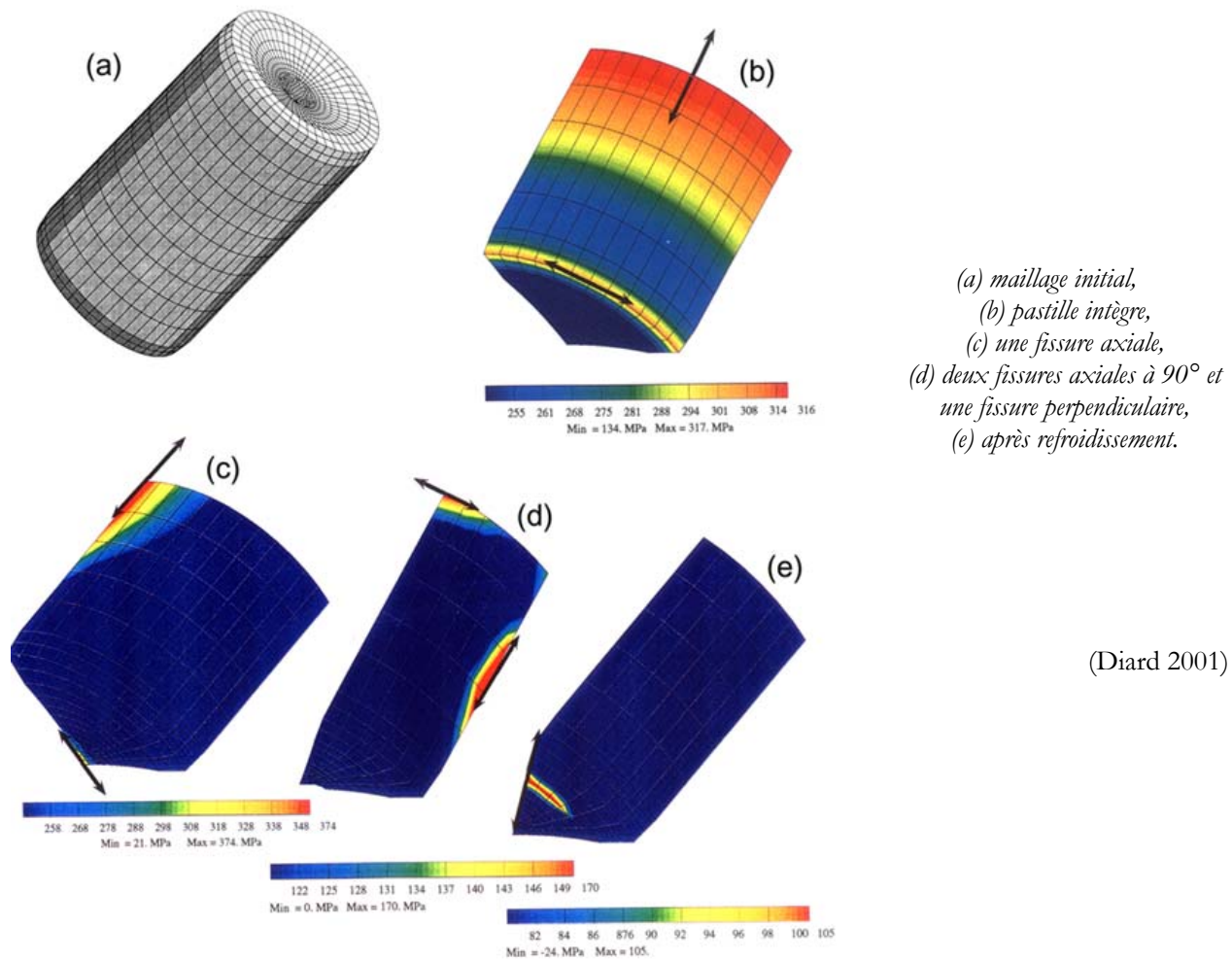


Figure 2.4 - Contraintes dans le dioxyde d'uranium au cours d'une montée en puissance.

Sous l'effet des contraintes thermiques, la pastille tend vers une forme de diabololo schématisée sur la Figure 2.5. La mise en diabololo dépend évidemment de la fracturation de la pastille. Le phénomène devient de moins en moins marqué lorsque le nombre de fissures augmente. Le jeu diamétral entre le combustible et la gaine à chaud, de 120 μm en début de vie, tend à diminuer jusqu'à s'annuler au cours de l'irradiation. Dans un premier temps, les mouvements des fragments devance la fermeture du jeu, qui se poursuit en raison du fluage de la gaine en Zircaloy sous la pression du fluide caloporteur.

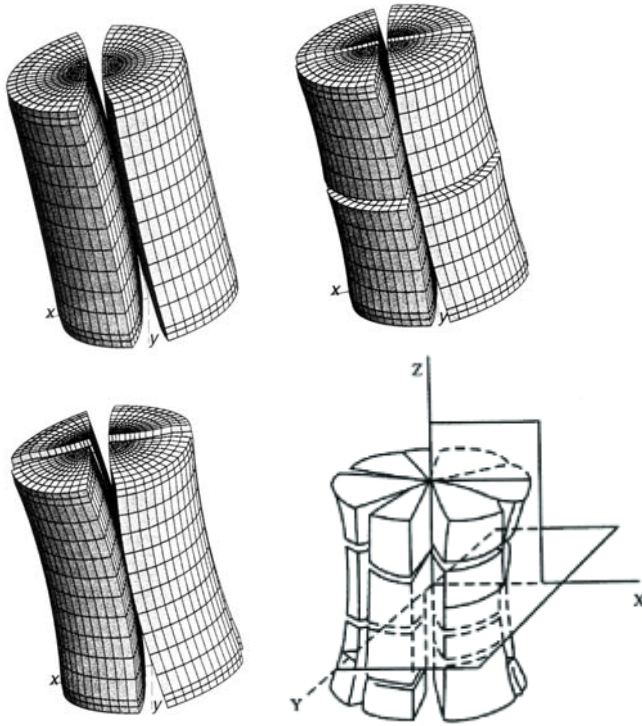


Figure 2.5 - Déformation thermique en diabolo de la pastille.

(Bailly 1996a, Diard 2001)

Sous irradiation, la céramique gonfle. En effet, lors de la fission d'un atome ^{235}U , deux atomes supplémentaires, en moyenne, doivent s'insérer dans le combustible. Il y a en fait une diminution du paramètre de maille ; mais également une augmentation du nombre de mailles. Au final on voit une augmentation du volume de l'oxyde. Ainsi, dans les crayons REP, après une diminution de la longueur de la colonne fissile due à la densification des pastilles^v, elle augmente linéairement avec le taux de combustion par gonflement solide et conduit au comblement complet du jeu pastille-gaine. Cette augmentation de volume peut être quantifiée à environ 0,4 % pour 10 GWj/t. La fermeture est effective, pour les combustibles actuels, pour des taux de 15 à 20 GWj/t, soit deux cycles d'irradiation dans les REP. Le crayon est alors dit « conditionné ». La géométrie particulière de la pastille joue alors un rôle primordial. Au niveau des fissures de la céramique, les points anguleux induisent des contraintes élevées sur la gaine. A plus fort taux, c'est principalement le gonflement de l'oxyde qui contrôle les sollicitations mécaniques lors de l'interaction pastille-gaine, en particulier lors des rampes de puissance.

2.3 Effets de l'irradiation

En réacteur, le flux neutronique, en fournissant de l'énergie aux matériaux, modifie leurs propriétés de manière significative. L'irradiation engendre un grand nombre de défauts ponctuels, bien plus que l'agitation thermique, qui va influencer le comportement de l'oxyde combustible. Le bombardement est dû aux neutrons 1_0n , et surtout aux produits de fission. La nature et le nombre de défauts créés dépendent à la fois du flux des particules et de leur énergie. La structure fluorine^{vi} de UO_2 permet de bien supporter cet endommagement.

^v Voir par la suite

^{vi} Voir cristallographie de l'oxyde d'uranium dans le chapitre suivant.

2.3.1 Création de défauts

Le combustible nucléaire est soumis à différentes sources de rayonnement : neutrons, particules α , produits de fission. Les dommages engendrés ont une influence sur les propriétés du matériau, aussi bien mécaniques que thermodynamiques. Le Tableau 2-1 résume par exemple les déplacements atomiques engendrés dans UO_2 par diverses particules. Il n'est pas simple d'étudier les mécanismes d'endommagement par irradiation, d'une part en raison de difficultés expérimentales et, d'autre part, à cause de la large plage d'énergies et de particules associées à l'irradiation en réacteur. Plusieurs modèles décrivent l'interaction des particules avec la matière. Ils prennent en considération la nature des projectiles, leur énergie, le transfert de cette énergie vers le milieu traversé et, bien sûr, les caractéristiques de la cible.

		Energie keV	Parcours μm	Nombre de défauts formés
Produits de fission	Léger	95 000	9	40 000
	Lourd	67 000	7	60 000
Particule α		5 000	12	200
Noyau de recul		95	0.025	1 200
Implantations ioniques	Xe	40	0.015	500
	I	72 000	7	57 000

Les neutrons ont un libre parcours moyen de 1 cm. L'énergie maximale cédée par un neutron de 1 MeV sur un atome U est de 20 keV, ce qui crée une cascade isolée de 250 défauts (Wiss 1997).

Tableau 2-1 - Défauts créés dans UO_2 par diverses sources énergétiques.

Rappelons le scénario des phénomènes rencontrés lors du recul des produits de fission. A grande vitesse (juste après la fission), les collisions inélastiques prédominent en début de trajectoire, conduisant à une excitation et une ionisation des atomes du réseau cible. Ensuite, les produits de fission perdent graduellement leur énergie cinétique par collisions ou par interactions électroniques. Leur charge diminue tout au long du trajet par capture d'électrons. A mesure que l'énergie de la particule décroît, les collisions élastiques sur les noyaux cibles deviennent prépondérantes, engendrant nombre de déplacements atomiques. Après la perte totale de leur énergie cinétique, les produits de fission restent dans le réseau sous forme d'impuretés.

Brinkman a suggéré l'idée de cascade de déplacements dès 1954 (Brinkman 1954). En regardant la fin du parcours (faible énergie des ions incidents), où les chocs élastiques sont prépondérants, il y a réarrangements atomiques et formation aléatoire d'agrégats de lacunes entourés par des amas d'atomes interstitiels issus du centre de la région perturbée : ce mécanisme est schématisé sur la Figure 2.6. Il apparaît une zone diluée, riche en lacunes et entourée par des interstitiels plus nombreux.

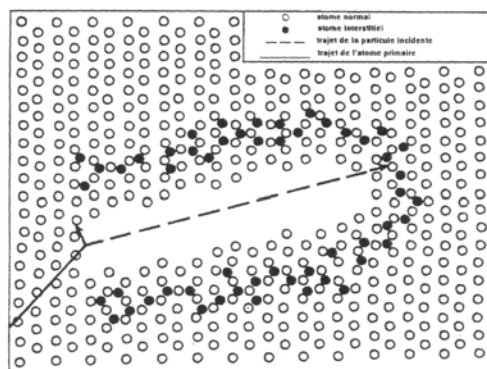


Figure 2.6 - Pointe de déplacements dans un matériau cristallin.

(Brinkman 1954)

En 1975, Fleischer décrit la formation de traces en plusieurs étapes (Fleischer 1975). Un ion lourd de grande énergie perd dans la cible une part de ses électrons. Ce projectile fortement chargé interagit ensuite avec tous les électrons des atomes du milieu, créant sur sa trajectoire un cylindre chargé positivement. Les cations formés subissent une forte répulsion coulombienne créant une explosion locale. Il y a donc formation d'une zone riche en lacunes le long de la trajectoire, subsistant malgré la relaxation du réseau perturbé. La formation de traces dans les isolants est facilitée par la faible densité d'électrons libres pouvant contrebalancer les forces de répulsion électrostatiques. Les atomes déplacés possèdent une énergie cinétique de plusieurs dizaines d'électrons-volts, à comparer aux énergies de déplacement des atomes de 20 eV pour O et de 40 eV pour U dans UO_2 . L'idée de pointe thermique est évoquée par Desauer (Desauer 1923). L'énergie cédée aux électrons de la cible est convertie principalement en énergie thermique. L'échauffement peut conduire facilement à la fusion locale du matériau qui, suivi d'une trempe très rapide, est à l'origine du désordre dans le réseau cristallin. Plusieurs auteurs ont proposé des modèles de pointe thermique, notamment Toulemonde et Szenes (Szenes 1983, Toulemonde 1993).

Les différents mécanismes décrits précédemment définissent la notion de pointe de fission, tenant compte du large spectre d'énergie mis en jeu et des états de charge considérés sur les produits de fission.

Nous allons à présent nous intéresser aux conséquences les plus marquantes de cette irradiation sur le combustible. En fait l'augmentation de la densité des défauts ponctuels a beaucoup plus d'effets que l'irradiation elle-même.

2.3.2 Diffusion

La diffusion est un phénomène principalement activé par la température. Néanmoins l'irradiation modifie fortement les vitesses de diffusion. Ainsi, les mécanismes de densification ou de fluage peuvent intervenir en réacteur pour des températures beaucoup plus basses. Les mécanismes de diffusion ne sont pas beaucoup affectés à haute température, mais, en dessous de 1 000°C, un mécanisme de diffusion athermique apparaît. Cette diffusion sous irradiation, fonction de la densité de fission, s'opère grâce aux défauts ponctuels créés par l'irradiation. Sous irradiation, les pastilles subissent une densification due à la disparition des porosités de plus petites tailles. Dans un premier temps, l'interaction des pointes de fission avec les petits pores dissout dans la matrice nombre de lacunes. Ensuite, la diffusion sous irradiation permet à ces lacunes d'atteindre les joints de grains, les plus gros pores ou la porosité ouverte. Dans les crayons REP cette densification atteint 0,25% de la hauteur de la colonne combustible pour des taux de combustion de 5 à 10 GW_j/t .

2.3.3 Fluage

En pile les mécanismes diffusionnels peuvent être accélérés. De plus, les dommages créés par irradiation peuvent apporter un nouveau fluage basé sur la diffusion sous irradiation. Dans ce mécanisme athermique, la vitesse de fluage d'irradiation est proportionnelle à la densité de fission $\dot{\phi}$: $\dot{\epsilon} \propto \sigma \dot{\phi}$. Ainsi, sous flux, un matériau peut fluer de manière significative à des températures relativement basses^{vii}. Dans le cadre du fluage d'irradiation, l'exposant de contrainte est proche de l'unité. Comme les mécanismes de type Newtonien, il est donc considéré non dommageable ; hormis évidemment les défauts créés par l'irradiation.

^{vii} La cinétique est lente mais détectable compte tenu des longs temps d'irradiation.

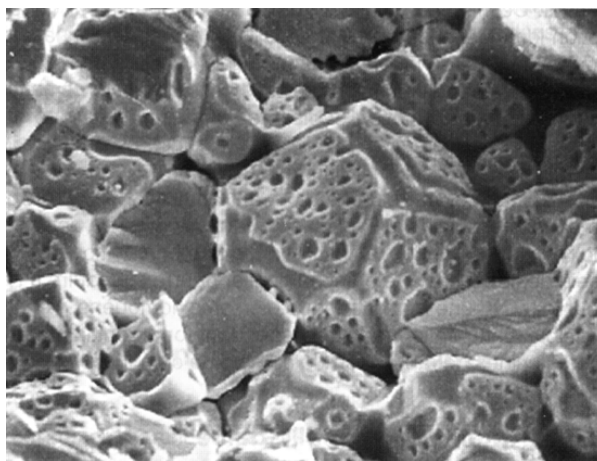
2.3.4 Gonflement et produit de fissions

Au fur et à mesure de la combustion de la matière fissile, la concentration en produits de fission dans l'oxyde augmente et influence en retour le comportement de la céramique. Les produits de fission à l'état gazeux engendrés dans les crayons sont essentiellement des gaz rares, sous diverses formes isotopiques, comme le xénon $^{129-131-134}\text{Xe}$ par exemple, ou encore le krypton $^{83-85-86}\text{Kr}$, et l'hélium résultant surtout de la décroissance α de composants tels ^{238}Pu ou ^{241}Am .

En REP, le rendement global de fission pour ces différents gaz est de l'ordre 0,31 at/fission, et il évolue en cours d'irradiation du fait de l'augmentation du nombre de fissions de Pu. Les gaz ainsi formés représentent des quantités importantes. Dans un combustible REP irradié à 60 GWj/t, le volume est presque de $1,5 \text{ cm}^3$ (conditions normales de température et de pression) par gramme d'oxyde. Il y a alors une augmentation de la pression interne à chaud du crayon d'environ 20 bars ; les gaz de fission y participent pour moitié. La distance de recul des fragments de fission est de l'ordre de $8 \mu\text{m}$, les atomes produits près de la surface s'échappent directement de l'oxyde vers l'extérieur, entraînant avec eux une partie des atomes de la pointe de fission. Ce phénomène d'éjection est l'origine principale du relâchement des gaz de fission à basse température.

Figure 2.7 - Canaux le long des grains, qui autorisent un léger flux gazeux.

(Lemaignan 2000)



Ces gaz, non solubles dans la matrice, peuvent migrer, grâce à la diffusion sous irradiation. Dans les combustibles, des observations au-delà de 20 GWj/t montrent une ségrégation progressive de gaz aux joints de grains puis, par coalescence, la formation de véritables canaux aux joints triples, qui autorisent un lent flux gazeux sortant de la pastille, mis en évidence sur la Figure 2.7.

Passé un seuil de combustion d'environ 45 GWj/t, il y a germination de bulles de gaz intragranulaires d'une taille variant de 10 à 100 nm suivant la température. Ces bulles croissent avec les taux de combustion. Toutefois, lorsqu'une fission se produit près d'une bulle, une partie des gaz peut être remise en solution sous l'effet des chocs élastiques avec les produits de fission ; une quantité importante de gaz est maintenue en sursaturation dans l'oxyde. Dans les pastilles REP à taux de combustion élevés, il apparaît une zone centrale à la microstructure particulière illustrée par la Figure 2.8. Les observations montrent une plus faible concentration en xénon dans ces zones. L'apparition de zones à relâchement accéléré semble liée à un seuil de température (vers 1200°C à faibles taux), qui décroît avec le taux de combustion.

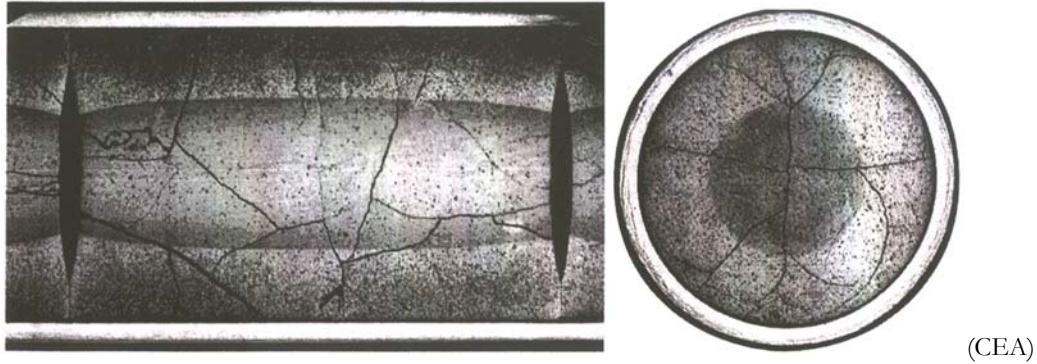


Figure 2.8 - Pastilles irradiées cinq cycles (65 GWj/t).

Il n'est pas facile de suivre expérimentalement le taux de relâchement des gaz de fission. Il faut tenir compte de la partie relâchée dans les volumes d'expansion du crayon et de la partie occluse dans le combustible. Des mesures par sublimation ont mis en évidence que le taux de relâchement croît rapidement avec la température au-delà de 1 000°C (Guerin 1996). En dessous de ce seuil, l'influence de la température est moins évidente. Le taux de combustion est également un bon indicateur. En fonctionnement normal, les fractions relâchées restent faibles (<1%) jusqu'à 40 GWj/t. Comme l'illustre la Figure 2.9, une nette accélération du processus est mise en évidence au bout du quatrième cycle.

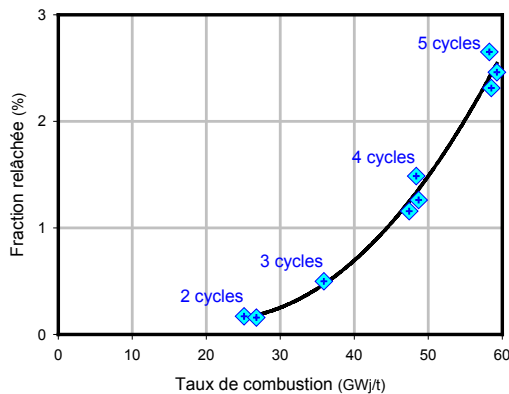


Figure 2.9 - Relâchement des gaz de fissions dans des crayons REP irradiés à Graveline.

(Guedeney 1991)

La concentration croissante en produits de fission (qui seront désignés par la suite PF) dans le combustible modifie ses propriétés tout au long de son séjour en réacteur. Cette évolution temporelle est combinée avec une répartition spatiale hétérogène dans la céramique. L'état physique et chimique des PF est fonction notamment du potentiel oxygène de l'oxyde, qui varie peu avec le taux d'irradiation. La masse totale des produits de fission, qui atteint près de 4,6% de la masse d'un combustible REP irradié à 45 GWj/t, doit être prise en compte dans la modélisation des propriétés de l'oxyde.

En ne tenant pas compte des gaz de fission évoqués précédemment, les autres PF forment des phases solides dans le combustible assez complexes : il s'agit aussi bien de précipités métalliques, de précipités oxydes ou de composés oxydés dissous dans la matrice. Dans les REP, des inclusions métalliques de faible taille (10 à 100 nm), souvent associés à des bulles de gaz, se forment préférentiellement dans les zones les plus chaudes à partir de métaux tels que Mo, Tc, Ru, Rh, Pd, Te, Sn. La taille des précipités dépend de la température et donc de la position dans la pastille. En périphérie, ceux-ci prennent la forme de particules blanches, visibles sur la Figure 2.10, qui peuvent atteindre plusieurs microns.

Les PF sous forme d'oxydes se mettent en solution dans le combustible. Il est difficile de prévoir les diagrammes de ces différentes phases, car ils dépendent, entre autres, de la température, de la teneur en PF, de la concentration en Pu, du rapport O/M,... Cependant, pour les faibles températures des REP, les PF ne précipitent pas instantanément : comme les microbulles de gaz de fission, ils peuvent être remis en solution par les fragments de fission. Dans les combustibles REP, les PF oxydés se trouvent en forte sursaturation.

2.3.5 Rim effect

En réacteur, sous l'effet du bombardement, l'isotope ^{238}U peut se transmuter, par capture neutronique, en ^{239}Pu ^{viii}. Cette réaction n'est pas négligeable puisque la teneur en Pu peut atteindre 3% au bout de 50 GWj/t dans un combustible REP contenant initialement uniquement de l'oxyde d'uranium. La fission du plutonium contribue alors à la production d'énergie, devenant même prépondérante aux forts taux de combustion. Cette puissance additionnelle compense l'épuisement en ^{235}U .

La section efficace d'absorption neutronique de ^{238}U présente certaines résonances ; les neutrons correspondant à ces énergies ont une très forte probabilité d'être absorbés dès leur pénétration dans le combustible. La concentration en Pu est donc plus forte à la périphérie des pastilles, et il y a un accroissement local important du taux de combustion. Ainsi, une zone périphérique apparaît, avec une très grande concentration en PF hors équilibre, et un fort endommagement dû à la densité de fission élevée. La faible température de cette région, inférieure à 700°C, ne permet pas la restauration de ces défauts et l'on observe une transformation complète de la microstructure de la zone. La taille de grains devient submicronique et la porosité augmente : au-delà de 60 GWj/t, celle-ci peut atteindre 12%. Ces changements influencent fortement les propriétés du combustible, comme l'illustre la Figure 2.10.

Diverses analyses ont montré que la majeure partie des gaz de fission est toujours présente dans la région. Cet effet de peau a peu d'influence sur l'accélération du relâchement de gaz aux forts taux de combustion. Par contre cette microstructure particulière, sur une épaisseur d'environ 200 μm , va jouer un rôle bénéfique lors des phénomènes d'interactions pastille-gaine. Elle est a priori beaucoup plus facilement déformable que le combustible massif et ira donc dans le sens d'une réduction des contraintes dans la gaine.

^{viii} D'abord en ^{239}Np puis en ^{239}Pu avec émission β et γ .

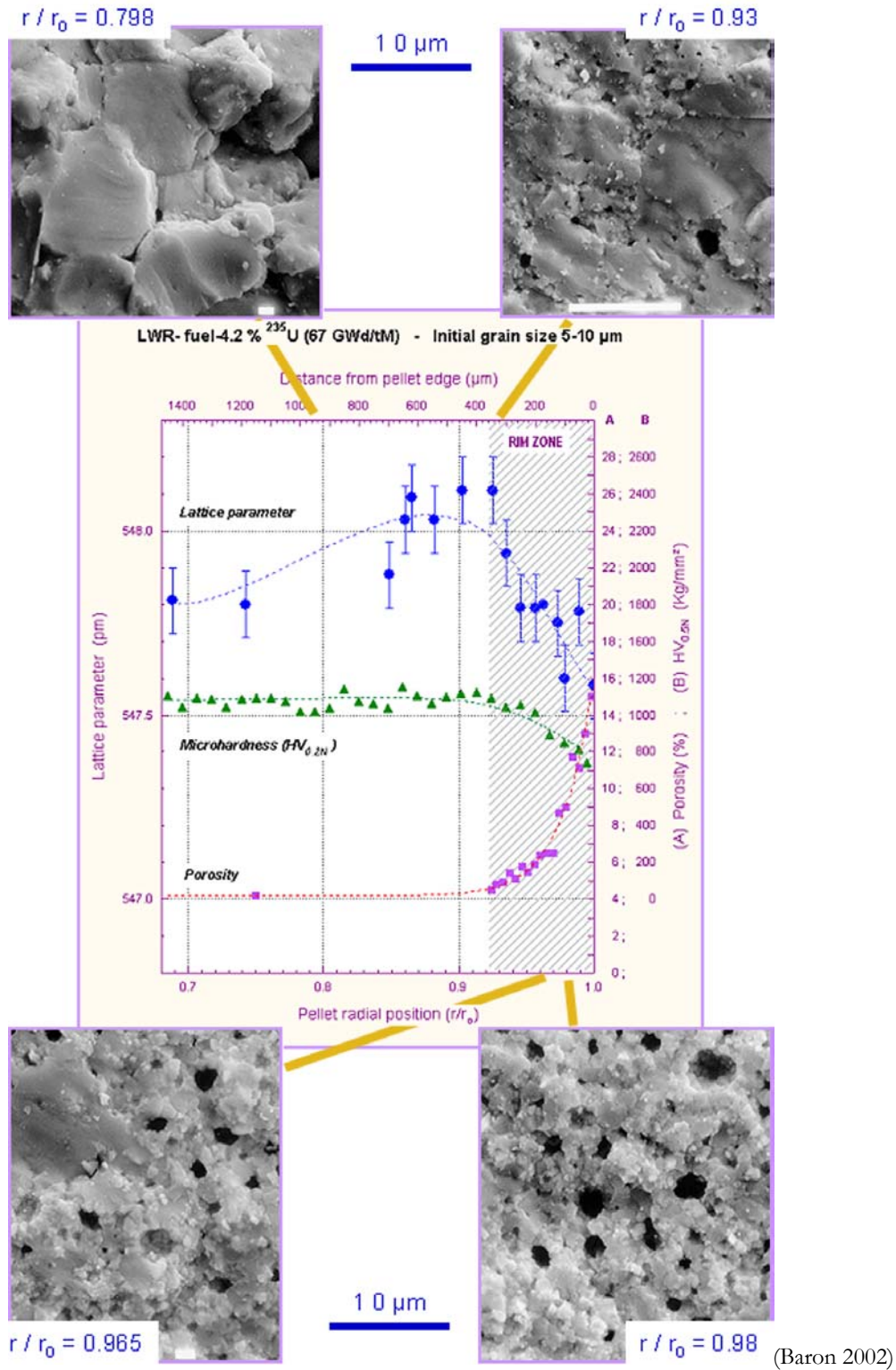


Figure 2.10 - « Rim effect » : évolutions de la microstructure et des propriétés locales d'une pastille REP irradiée à 67 GWj/t

2.4 Fonctionnement d'un réacteur REP

Les paragraphes qui suivent vont être l'occasion de résumer tous les phénomènes décrits précédemment et rencontrés par le combustible durant son séjour en réacteur.

Le gradient thermique va fissurer la pastille dès la première montée en puissance du réacteur. Les pastilles se déforment en "diabolo". La température modifie également la microstructure du combustible. Lors du premier cycle, la microstructure de la pastille évolue peu. L'irradiation a comme principales conséquences un gonflement macroscopique de la céramique, une activation des phénomènes liés à la diffusion, et l'apparition d'un fluage d'irradiation proprement dit. Il commence à se former un effet de peau, « rim effect », avec une microstructure assez particulière.

Le combustible gonfle sous irradiation. Parallèlement, la gaine flue vers la pastille, en raison du différentiel de pression entre le caloporteur et l'intérieur du crayon. Le contact pastille-gaine s'établit en début de deuxième cycle. La gaine est contrainte alors en traction et peut présenter des risques de rupture par localisation des déformations, et peut être assistée par des phénomènes de corrosion sous contraintes. Après rattrapage du jeu, la gaine est sollicitée par le gonflement de l'oxyde sous l'effet de l'irradiation. Ce gonflement correspond à des vitesses de déformation faibles, et le fluage d'irradiation du combustible et le fluage de la gaine sont en général suffisants pour relaxer les contraintes associées, avant qu'elles atteignent un niveau critique provoquant l'endommagement de la gaine. De plus des évidements sont prévus lors de la fabrication des pastilles, à leurs extrémités, espace dans lequel le combustible peut s'écouler : c'est surtout lors des rampes de puissance que les mécanismes de fluage, en particulier thermiques, jouent un rôle significatif.

Au cours des premiers cycles, le relâchement des PF est faible ($< 0,2\%$ des gaz formés) et essentiellement athermique. La pression initiale interne du crayon varie donc peu ; elle dépend surtout du changement de volume libre dans le crayon. Les gaz relâchés constituent moins de 1 % des gaz du crayon après 2 cycles.

Sous l'effet de l'irradiation, le combustible perd son homogénéité à partir du troisième cycle. Dans la périphérie, le taux de combustion peut atteindre des valeurs locales très élevées : la microstructure est fortement perturbée. L'énergie interne conduit à une restructuration du combustible, c'est la formation du « rim ». Dans la zone centrale plus chaude, les gaz de fission migrent et se concentrent aux joints de grains. Ces gaz accumulés commencent lentement à coalescer et à former un réseau de canaux permettant une diffusion gazeuse vers les surfaces libres des pastilles. Cela se traduit par une faible augmentation de la pression interne du crayon ; la fraction de gaz relâchée est de l'ordre de 0,5 %.

Au quatrième cycle, tous les phénomènes entrent en jeu et s'accroissent en raison du fort taux de combustion. Au centre, le combustible chaud a perdu une partie des gaz de fission. En périphérie la concentration en Pu est grande. On observe un contact entre la pastille et la gaine, avec une interaction mécanique et physico-chimique forte. Le diamètre des crayons augmente par gonflement de l'oxyde, mais la hauteur des plis reste à peu près constante depuis le deuxième cycle. La corrosion de la gaine est importante, la couche de zircone interne peut atteindre localement 30 μm d'épaisseur.

Finalement, ces évolutions peuvent être schématiquement décrites par la Figure 2.11, résumant la vie du combustible en réacteur.

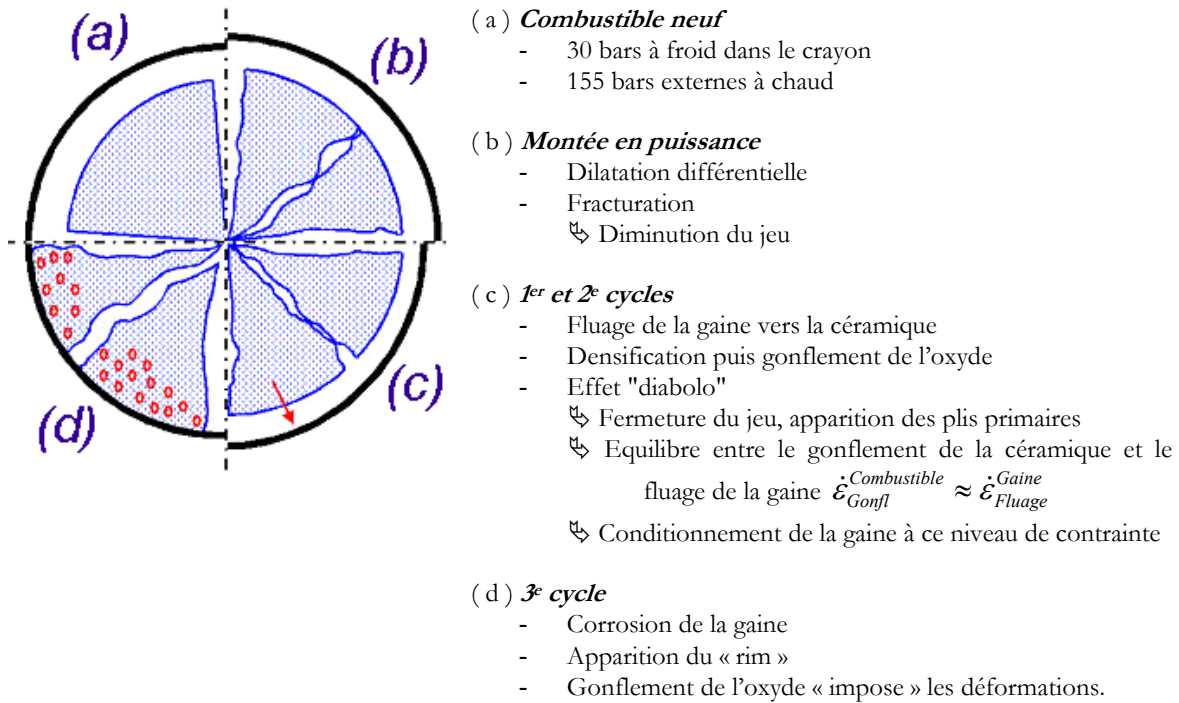
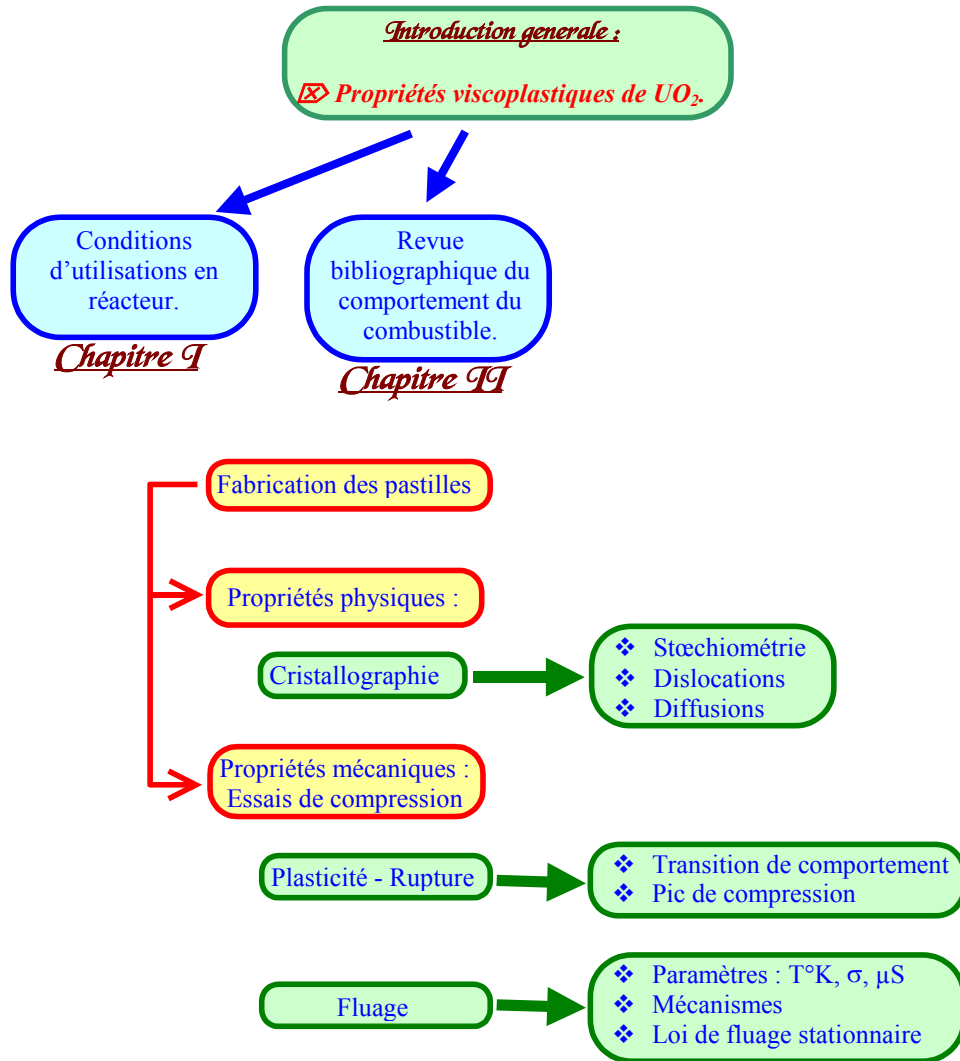


Figure 2.11 - Evolution du combustible en réacteur de type REP.

*« Moins on est intelligent, plus on a de chance d'être romancier. Sinon, on écrit des thèses. »
Georges Simenon*

3 Revue bibliographique du comportement mécanique de UO_2





3 REVUE BIBLIOGRAPHIQUE DU COMPORTEMENT MECANIQUE DE UO₂

- 3.1 FABRICATION DU COMBUSTIBLE.
 - 3.1.1 Cycle du combustible
 - 3.1.2 Fabrication des pastilles
 - 3.1.2.1 La poudre
 - 3.1.2.2 La pastille
- 3.2 PROPRIETES PHYSIQUES DE UO₂
 - 3.2.1 Structure cristallographique
 - 3.2.2 Ecart à la stœchiométrie
 - 3.2.3 Dislocations dans la structure fluorine
 - 3.2.4 Diffusion dans UO₂
- 3.3 COMPORTEMENT MECANIQUE
 - 3.3.1 Plasticité - Rupture
 - 3.3.1.1 Carte de rupture
 - 3.3.1.2 Transition d'un comportement fragile vers un viscoplastique.
 - 3.3.1.3 Essais d'écrouissage : mise en évidence d'un pic de compression
 - 3.3.2 Fluage
 - 3.3.2.1 Carte de fluage
 - 3.3.2.2 Effets des paramètres macroscopiques
 - 3.3.2.3 Influence de la microstructure
 - 3.3.2.4 Mécanismes de déformation
 - 3.3.2.5 Description à l'aide d'une loi de fluage stationnaire
- 3.4 CONCLUSION

3.1 Fabrication du combustible.

3.1.1 Cycle du combustible

Le procédé de fabrication du combustible est orienté par les caractéristiques finales souhaitées pour la pastille (bonne stabilité thermique, dégagement minimal des gaz de fission, bon comportement face à l'irradiation), tout en étant compatible avec l'ensemble du cycle combustible. Chacune des étapes du cycle, schématisé par la Figure 3.1, constitue une industrie particulière, qui passe de l'exploitation minière à la conversion chimique de l'uranium, puis la fabrication des combustibles en aval et, finalement, le retraitement et le recyclage des matières usées.

L'uranium est, à l'état pur, un métal gris très dense. Naturellement, il se trouve sous forme de différents minerais. Une fois le minerai extrait, il subit une étape de concentration par voie chimique. Le produit obtenu est une poudre jaune vif, appelée « yellow cake ». L'isotope fissile ²³⁵U n'y étant présent qu'avec une teneur de 0,7%, il faut enrichir l'uranium naturel jusqu'à une concentration d'environ 3 à 5%. Le yellow cake est tout d'abord transformé en hexafluorure d'uranium, qui a la propriété de pouvoir passer de l'état solide à gazeux à basse température (65°C). Les différents procédés d'enrichissement s'appuient sur la faible différence de masse entre les

isotopes. L'enrichissement par diffusion gazeuse est la principale solution utilisée actuellement. La diffusion des molécules de gaz à travers une paroi poreuse est d'autant plus rapide que sa masse est faible. Le gaz UF_6 est donc « filtré » au travers d'une membrane, dont les porosités sont de l'ordre du centième de micron, grâce à une différence de pression de part et d'autre de la paroi. Les molécules contenant l'atome ^{235}U se déplacent plus vite, le gaz recueilli est donc légèrement plus riche. Plusieurs étages d'enrichissement (+ 0,2%) en série permettent d'atteindre la teneur souhaitée.

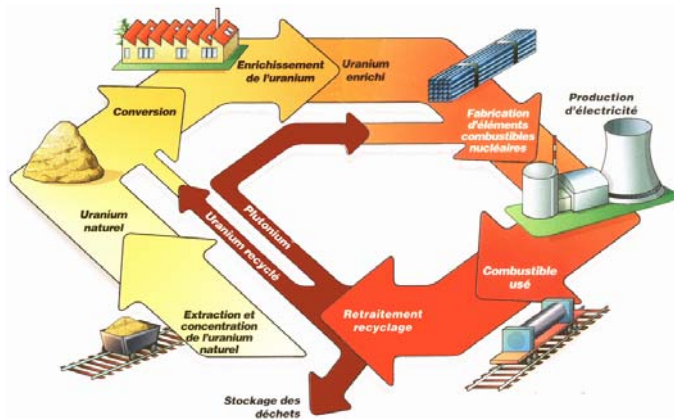


Figure 3.1 - Schéma du cycle du combustible nucléaire.

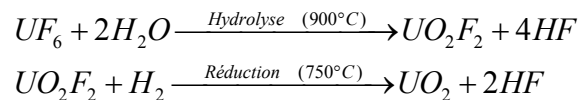
(COGEMA 1999)

3.1.2 Fabrication des pastilles

Le combustible oxyde se présente dans son état fini sous forme de pastilles cylindriques. Le procédé retenu en France pour l'élaboration du combustible est décrit par la Figure 3.2 (COGEMA 1994).

3.1.2.1 La poudre UO_2

Après défluoruration, la poudre est obtenue par conversion par voie sèche n'invoquant que des réactions gaz-gaz ou gaz-solide, prévenant tout effluent liquide contaminé (Moneyron 1990) :



Ces opérations sont réalisées sur une installation unique, composée en tête d'un réacteur d'hydrolyse, puis un four rotatif de pyrohydrolyse réductrice (Marsh 1996). Le produit des réactions, l'acide fluorhydrique, très pur, est récupéré et valorisé. La stabilité de fonctionnement d'un tel réacteur, due au petit nombre de paramètres opératoires (température, pression, débit), la rend facilement exploitable industriellement, avec un risque de criticité très faible.

3.1.2.2 La pastille UO_2

La fabrication proprement dite des pastilles est décrite par le procédé dit "Double Cycle Normal" (DCN). La densité finale est ajustée par l'addition d'un produit porogène. La poudre brute présentant une coulabilité insuffisante, elle subit une étape de granulation consistant en un compactage sous faible pression (90 MPa). Les comprimés obtenus sont alors concassés puis introduits dans un mélangeur dans une opération dite de sphéroïdisation aboutissant à la formation de granules lubrifiés dont le pressage sous 350 MPa permet la fabrication des pastilles crues.

Le processus de fabrication du combustible

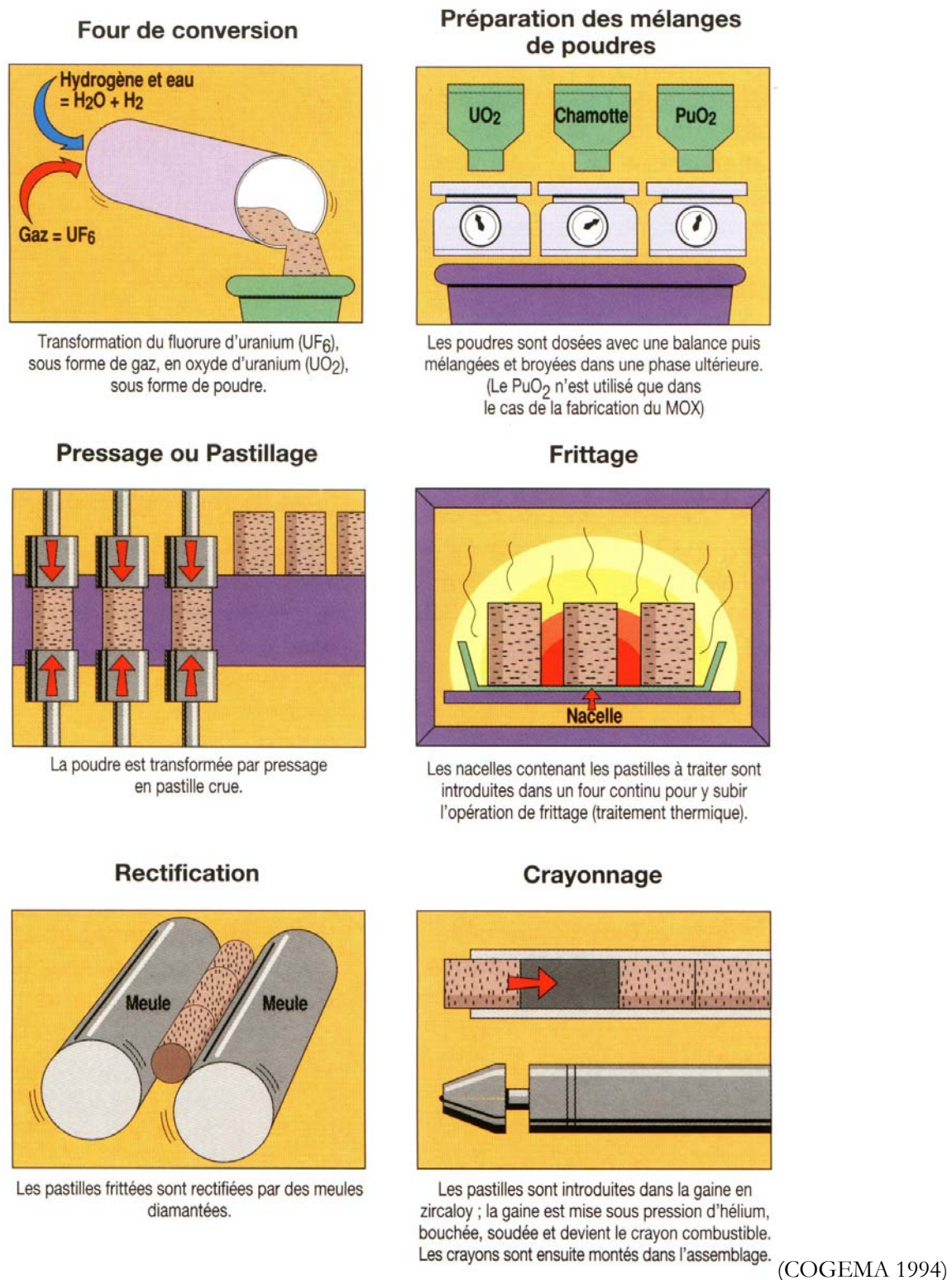


Figure 3.2 - Procédé de fabrication des pastilles d'oxyde d'uranium pour REP.

Les pastilles sont frittées sous hydrogène dans un four continu, pendant environ 4 heures à 1740°C. Les cylindres obtenus ont alors une porosité ouverte inférieure à 0,1%, ce qui évite le piégeage d'humidité et réduit le dégagement des gaz de fission. La densité à ce stade est de 10,46 g.cm⁻³, soit 95,5% de la densité théorique. La distribution de la porosité est bimodale : une part de faible taille est constituée de défauts de frittage, l'autre est créée par les agents porogènes. Aucune phase intergranulaire n'a été observée dans les différents combustibles standards (Perez 1993). Les pastilles sont finalement rectifiées, avant empilement dans le crayon (opération dite de « crayonnage ») (Bailly 1996b, Baron 1999b). Les évidements sur chaque face supérieure et inférieure des pastilles correspondent aux traces laissées par les pistons lors de l'opération de compaction des crûs.

Un autre procédé, dit Double Cycle Inversé, consiste à exercer une première pression de compactage supérieure à celle de pressage final. La poudre, compactée sous contrainte élevée (> 600 MPa), permet d'obtenir des granulés résistants de masse volumique élevée (6,5 g.cm³). Le pressage sous faible contrainte (200 MPa) donne des crûs de masse volumique légèrement inférieure. La microstructure finale est assez grossière et garde la mémoire des granulés. Pour une densité de 95% de la densité théorique, elle présente l'inconvénient d'une forte porosité ouverte (3,5%), mais obtenue sans utilisation d'agent porogène.

Ce type de crayon conduit, lors de son utilisation, à une interaction entre la pastille céramique et la gaine métallique. Pour prévenir toute rupture de cette première barrière de sûreté (gaine), il faut prendre quelques précautions (notamment lors des rampes de puissance), ou encore limiter les taux de combustion. Dans l'optique de diminuer les contraintes dans le Zircaloy, il est nécessaire de s'intéresser aux aptitudes viscoplastiques du combustible. Dans ce chapitre, nous allons donc décrire les propriétés mécaniques du dioxyde d'uranium, notamment en fluage.

3.2 Propriétés physiques de UO₂

3.2.1 Structure cristallographique

Le dioxyde d'uranium appartient au groupe d'espace $Fm\bar{3}m$, il cristallise dans une structure cubique de type fluorine CaF₂. Sa maille élémentaire, présentée sur la Figure 3.3^{ix}, est constituée de deux sous-réseaux : un réseau Cubique Face Centrée d'ions U⁴⁺ et un réseau Cubique Simple d'ions O²⁻. Le paramètre de maille est égal à 0,547 nm.

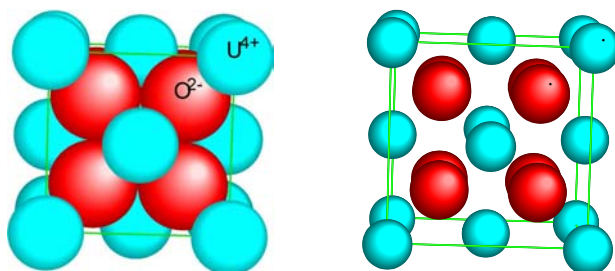


Figure 3.3 - Maille élémentaire de UO₂ avec les deux sous-réseaux d'ions U⁴⁺ et O²⁻.

^{ix} Sur ces figures, les dimensions des atomes sont fixées arbitrairement pour plus de lisibilité ; les rayons atomiques réelles sont 0,97 Å pour U⁴⁺ et 1,4 Å pour O²⁻.

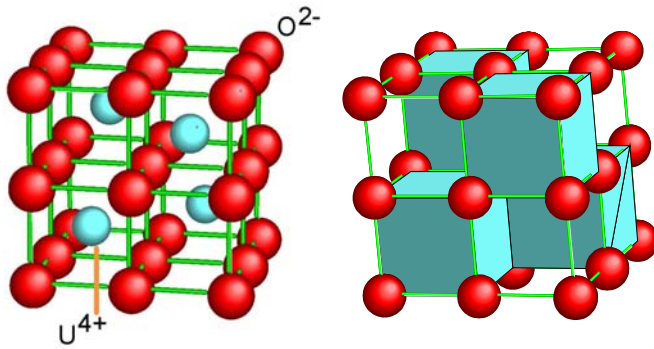


Figure 3.4 - Structure du dioxyde d'uranium décrite à partir du sous-réseau d'ions O^{2-} .

D'autres manières existent pour décrire cette structure. Soit les ions U^{4+} forment un réseau CFC, où tous les sites tétraédriques sont occupés par les ions O^{2-} , soit les ions O^{2-} forment un réseau cubique simple où les ions U^{4+} occupent un site sur deux (Figure 3.4). Il y a là sans doute une explication au large domaine de stabilité de l'oxyde $\text{UO}_{2\pm x}$ sous et surstœchiométrique. En effet, il existe un site sur deux vacants, et les ions oxygène interstitiels peuvent donc facilement se répartir dans le cristal en différents défauts complexes (lacunes en oxygène + ions interstitiels). Cette particularité permet au cristal de solubiliser aisément l'oxygène interstitiel. Une telle structure cristalline est caractérisée par ses atomes plus proches voisins : les paramètres associés sont rassemblés dans le Tableau 3-1.

Ions	Premiers voisins	Distances
U^{4+}	12 U^{4+}	$\text{U}^{4+} - \text{U}^{4+} : a\sqrt{2}/2 = 3,868\text{\AA}$
	8 O^{2-}	$\text{U}^{4+} - \text{O}^{2-} : a\sqrt{3}/4 = 2,369\text{\AA}$
O^{2-}	4 U^{4+}	$\text{O}^{2-} - \text{U}^{4+} : a\sqrt{3}/4 = 2,369\text{\AA}$
	6 O^{2-}	$\text{O}^{2-} - \text{O}^{2-} : a/2 = 2,735\text{\AA}$

Tableau 3-1 - Premiers voisins dans le cristal UO_2 .

Afin de mieux appréhender les dislocations et leurs systèmes de glissement, il est plus simple de décrire les structures cristallines par une suite d'empilements plus ou moins denses d'atomes. Par exemple, la structure fluorine présente une séquence de quatre plans de type (100), dans l'ordre $\dots\text{OuO}\bar{\text{u}}\text{OuO}\bar{\text{u}}\dots$, où les plans O forment le réseau cubique d'ions O^{2-} , u et $\bar{\text{u}}$ composant le réseau CFC de cations. Ces empilements sont schématisés sur la Figure 3.5.

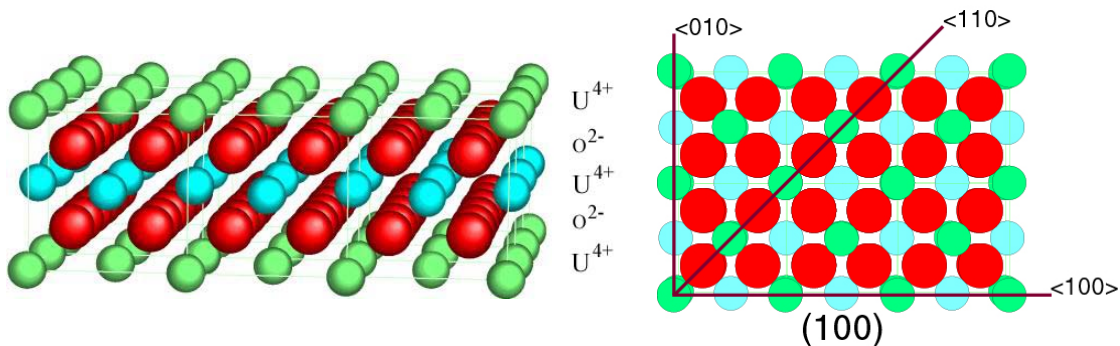


Figure 3.5 - Coupe du cristal selon les plans (100) montrant une séquence de type $\dots\text{OuO}\bar{\text{u}}\text{OuO}\bar{\text{u}}\dots$.

Une autre coupe intéressante est présentée sur la Figure 3.6, selon les plans de type (110). Une simple séquence de type ...*AbAbAb*... montre les plans denses où le rapport stœchiométrique est respecté.

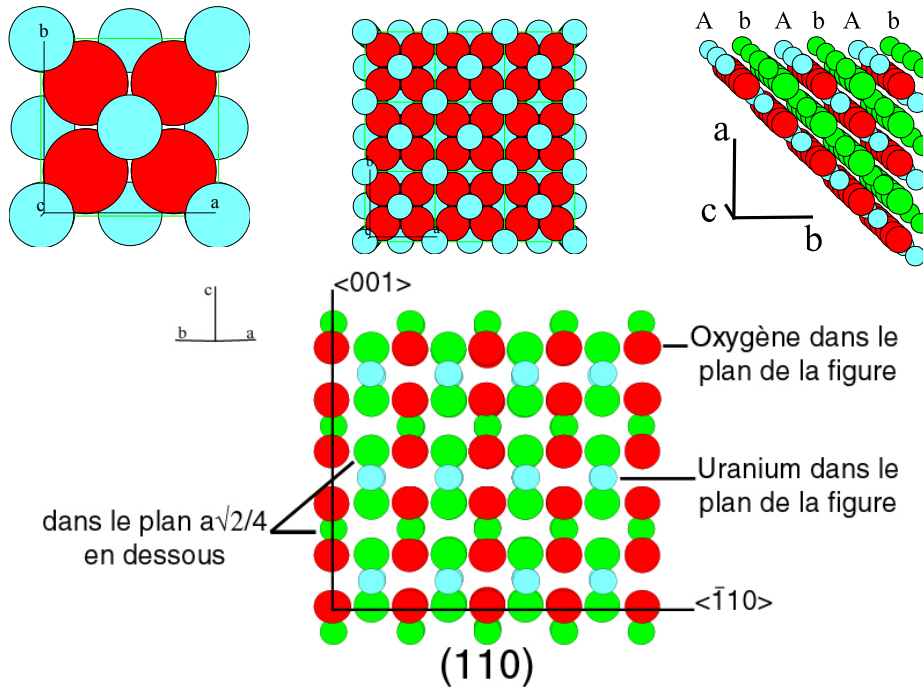


Figure 3.6 - Coupe du cristal selon les plans (110) avec une séquence du type ...*AbAbAb*....

3.2.2 Ecart à la stœchiométrie

De par les degrés de valence élevés de l'uranium (supérieurs ou égaux à 4) et sa structure cristallographique, la composition des oxydes d'uranium s'étend sur un large domaine stœchiométrique. Le diagramme de phase du système U-O est décrit sur le domaine U- UO_3 par la Figure 3.7. Ces diagrammes sont la compilation de résultats obtenus par plusieurs auteurs et doivent donc être considérés avec prudence quant aux valeurs absolues de températures et de ratios (Levin 1964, Rachev 1964, Martin 1965, Bannister 1967, Ackermann 1969, Levin 1969, Ishii 1970, Kovba 1970, Lierde 1970, Levinskii 1974, Bannister 1975, Levin 1975, Keim 1977, Roth 1981, Roth 1983, Dherbey 2000).

En effet, toutes les études n'utilisent pas les mêmes conditions expérimentales (préparation d'échantillons, atmosphères,...), ni les mêmes méthodes d'investigation (céramographies, diffraction aux RX in situ, spectrométrie de masse HT, gravimétrie, simulations,...). Toutefois, ces deux diagrammes conservent un intérêt qualitatif car présentant les différents domaines d'existence des phases. La plage de ratios s'étendant de 1,5 à 2,4, autour de UO_2 , a été particulièrement étudiée (8 références). Les incertitudes y sont donc beaucoup moins élevées. Ainsi, au-delà de 400°C, le dioxyde d'uranium possède un large domaine de surstœchiométrie. La phase fluorine UO_{2+x} s'étale jusqu'à un rapport O/U de 2,2 vers 1 100°C. Un domaine de sous-stœchiométrie apparaît lorsque les températures s'élèvent au-dessus de 1 100°C. Les compositions du dioxyde s'étendent entre des valeurs extrêmes de 1,6 à 2,3 du rapport O/U à 2 400°C. L'oxyde stœchiométrique est très

réfractaire, son point de fusion est situé à $2\,860^\circ\text{C}$ (Keim 1977). A température ambiante, le dioxyde n'existe qu'à l'état stœchiométrique.

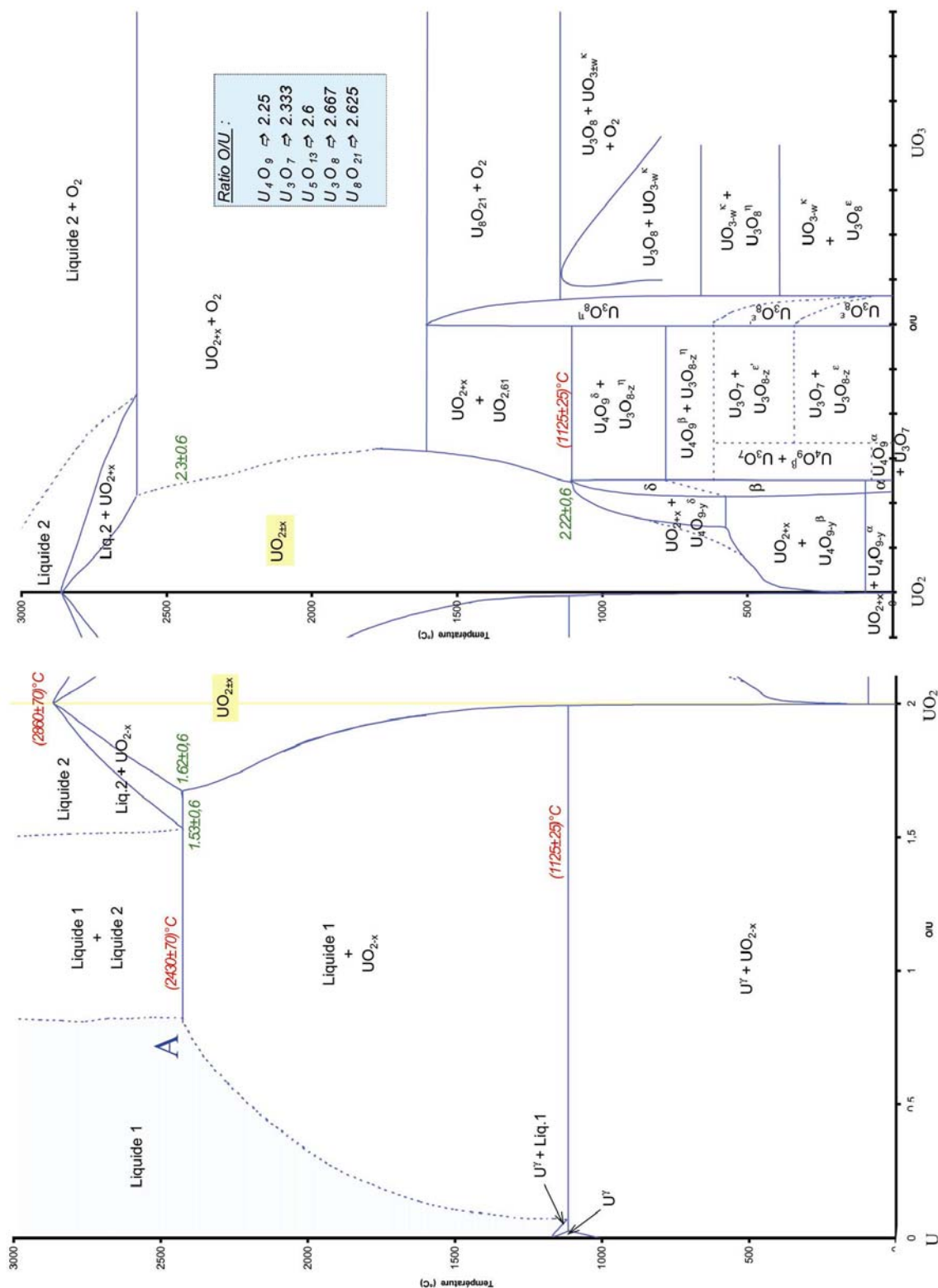


Figure 3.7 - Systèmes U-UO_2 et UO_2-UO_3 .

3.2.3 Dislocations dans la structure fluorine

La structure particulière en réseaux cubiques de l'oxyde d'uranium en fait une céramique à priori facilement déformable, en raison des nombreux systèmes de glissements envisageables.

Des études en compression de monocristaux de UO_2 (Rapperport 1960, Alamo 1978) ont révélé que le système principal de glissement était $\{100\}\langle 110\rangle$, pour des températures variant entre 700 et 1 900°C. Cependant, les systèmes secondaires $\{110\}\langle 110\rangle$ ou $\{111\}\langle 110\rangle$ par glissements déviés peuvent être activés lorsque la température s'élève.

Contrairement aux métaux, la structure ionique de la céramique impose l'introduction d'au moins deux demi-plans supplémentaires dans les dislocations coin pour maintenir la neutralité électrique du cristal. La charge électrostatique résiduelle de ces dislocations, qui n'est pas facilement estimable, dépend du système considéré et du nombre de plans supplémentaires. Une énergie potentielle mécanique (déformations élastiques du cœur du défaut) peut être associée à chaque dislocation introduite dans le réseau. Dans le cas des céramiques une partie électrostatique doit y être ajoutée : en ce qui concerne le dioxyde d'uranium, cette deuxième composante est plus grande. La minimisation de la partie électrostatique est un critère plus important que la réduction de partie élastique dans le choix des systèmes de glissement.

Par exemple, Brantley donne une projection dans le plan (110) d'une dislocation coin pour le système $\{100\}\langle 110\rangle$, illustrée par la Figure 3.8 (Brantley 1970). Cette dislocation est créée en introduisant deux plans $(\bar{1}10)$ adjacents supplémentaires. Au niveau du cœur de la dislocation, cet arrangement d'atomes assure la neutralité de l'ensemble.

Deux autres types de dislocations coin, chargées respectivement positivement et négativement, peuvent exister, soit en supprimant les ions A ou A' ; soit en ôtant les ions A et B ou A' et B'. Il est également possible de décrire des dislocations ayant une alternance de crans positifs et négatifs. Ce type de défauts globalement neutre paraîtrait énergiquement plus favorable.

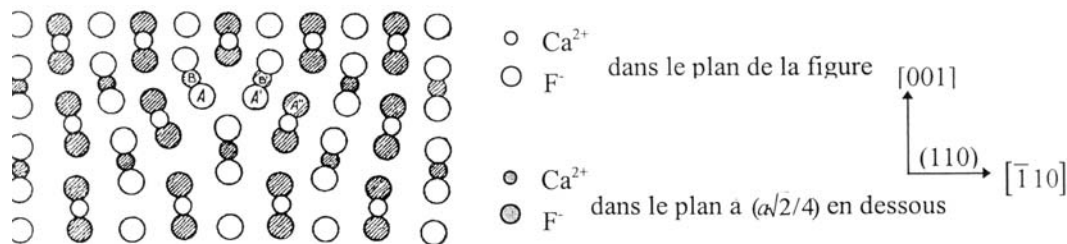


Figure 3.8 - Dislocation coin dans le système $\{100\}\langle 110\rangle$.

La stœchiométrie joue un rôle sur ces dislocations (Sawbridge 1970). Ainsi, un excès d'oxygène favorise une configuration positive et inversement. Le mouvement de dislocations chargées est alors nettement ralenti par la présence d'impuretés ou de défauts chargés, comme les produits de fission.

Il est beaucoup plus difficile de représenter des dislocations vis. Evans a remarqué qu'elles ne portent pas de charge électrostatique (Evans 1969b). De plus, en observant les points d'émergence, les dislocations vis se déplacent plus vite que les dislocations coin dans les plans $\{100\}$.

3.2.4 Diffusion dans UO_2

Comme nous l'avons vu précédemment, la structure cristallographique du dioxyde d'uranium autorise une grande latitude de variation de composition autour de sa stœchiométrie. La diffusion de l'oxygène y est beaucoup plus rapide que celle de l'ion métallique. Le rapport des

coefficients de diffusion $D_{O^{2-}}/D_{U^{4+}}$ est de l'ordre de 10^5 à $1\ 500^\circ\text{C}$. Cette diffusion s'opère à la fois par sauts de lacunes et par mouvements d'ions interstitiels. L'expression la plus souvent utilisée dans le domaine de température allant de 750 à $1\ 250^\circ\text{C}$ est fournie par (Martin 1969) :

$$D_{O^{2-}} \text{ (cm}^2\text{s}^{-1}\text{)} = 0,26 e^{\left(\frac{-59300}{RT}\right)}$$

La stœchiométrie joue un rôle primordial. Dans le domaine surstœchiométrique, l'oxygène diffuse par un mécanisme interstitiel, avec une énergie d'activation de 88 kJ.mol^{-1} , alors que, dans le domaine sous-stœchiométrique, les lacunes sont le moteur du phénomène, caractérisé par une énergie de 210 kJ.mol^{-1} . Pour $\text{UO}_{2.00}$, l'anion diffuse beaucoup moins vite, l'énergie d'activation est la somme de l'énergie de mouvements des lacunes et de création de paires de Frenkel.

Les atomes d'uranium, moins mobiles que ceux d'oxygène, vont limiter tous les processus diffusionnels comme le frittage ou le fluage. L'énergie d'activation est nettement plus élevée. Les mécanismes de diffusion sont les mêmes que pour l'anion oxygène, selon la sous- ou la surstœchiométrie ; mais les défauts sont plus complexes (bi lacunes, trio de Schottky). La diffusion s'accélère fortement dès que l'on s'écarte de la composition stœchiométrique. L'écart à la stœchiométrie (x) peut être relié à la concentration en lacunes d'ions uranium. Ainsi, Knorr (Knorr 1989) propose une relation entre cet écart et le coefficient de diffusion, selon une loi de type Arrhénius :

$$D_{U^{4+}} = D^0 e^{\left(\frac{-Q}{RT}\right)}$$

Ecart à la stœchiométrie	Diffusion en volume		Diffusion aux joints de grains	
	D_{vol}^0 (m ² .s ⁻¹)	Q_{vol} (kJ.mol ⁻¹)	D_{jdg}^0 (m ² .s ⁻¹)	Q_{jdg} (kJ.mol ⁻¹)
0	$1.9\ 10^{-5}$	544	$1\ 10^{-2}$	377
0.001	$1.1\ 10^{-7}$	418	$2.5\ 10^{-5}$	272
0.01 à 0.2	$1.33\ 10^{-4}\ x^2$	368	$7.5\ 10^{-4}\ x$	238

Tableau 3-2 - Paramètres caractéristiques de l'autodiffusion de l'uranium dans UO_{2+x} .

3.3 Comportement mécanique

Il existe deux manières courantes d'étudier le comportement viscoplastique d'un matériau. La première est d'appliquer une charge, généralement constante, et de mesurer la vitesse de déformation de l'éprouvette. C'est l'essai de fluage. Une autre méthode consiste à imposer une vitesse de déformation et à enregistrer l'effort nécessaire pour y parvenir. Cet essai à vitesse de déformation imposée est aussi appelé test de déformation plastique ou d'écrouissage. Ces deux techniques étudient en général des gammes de vitesses différentes : de 10^{-8} à 10^{-4} s^{-1} pour le fluage et, juste au-dessus, de 10^{-4} à 10^{-2} s^{-1} pour les tests d'écrouissage. Beaucoup d'études ont été menées dans les années 1970 sur les propriétés viscoplastiques de l'oxyde d'uranium, en flexion et surtout en compression. Le but principal en était de proposer une loi plus ou moins simple de déformation $f(\dot{\epsilon}, \sigma, T, \mu S) = 0$. Ces campagnes ont été étendues vers la compréhension du fluage en pile ou vers les mécanismes de fracturation.

3.3.1 Plasticité - Rupture

3.3.1.1 Carte de rupture

De nombreuses études ont caractérisé la rupture du dioxyde d'uranium. L'ensemble des résultats est repris dans des cartes de mécanismes de rupture dont l'exemple du dioxyde d'uranium est illustré par la Figure 3.9. Pour les établir, Ashby a appliqué la même méthode que celle employée pour la construction des cartes de fluage (Ashby 1979, Gandhi 1979). Ici les mécanismes de rupture les plus probables sont placés dans un espace température-contrainte. Sept mécanismes ont été ainsi répertoriés :

- ✓ le clivage et la rupture fragile intergranulaire (BIF), où 3 régimes sont présents ;
- ✓ la rupture ductile à basse température ;
- ✓ la fissuration transgranulaire par fluage, qui intervient vers $0,5 T_M$ pour les céramiques ;
- ✓ la rupture intergranulaire par fluage, pour des températures plus élevées et des contraintes plus faibles ;
- ✓ et la rupture ductile, où les matériaux semblent tellement plastiques qu'une striction totale peut être observée.

Une limite supérieure dite de rupture dynamique est également introduite pour les vitesses de déformation très élevées (de l'ordre de 10^6 s^{-1}). Les transitions entre les différents mécanismes ne sont pas brutales, et les frontières se traduisent par des zones de transition grisées. Les différents paramètres, tels que la pureté, la porosité, la taille de grain ou la méthode de fabrication, augmentent les incertitudes, surtout pour les céramiques. Le dioxyde d'uranium rompt par clivage en dessous de 1300°C et ne présente pas de ductilité significative. Dans ce domaine, la rupture est légèrement sensible à la vitesse de déformation. Au-delà de $0,5 T_M$, soit aux environs de 1400°C , des mécanismes de fluage apparaissent et le type de rupture dépend de la contrainte appliquée (i.e. de la vitesse de sollicitation) : la rupture intergranulaire ductile en fluage redevient fragile pour les fortes contraintes. Enfin, pour les températures élevées (supérieures à $0,8 T_M$), la croissance des grains et les diffusions deviennent rapides et modifient les mécanismes associés aux plus fortes contraintes.

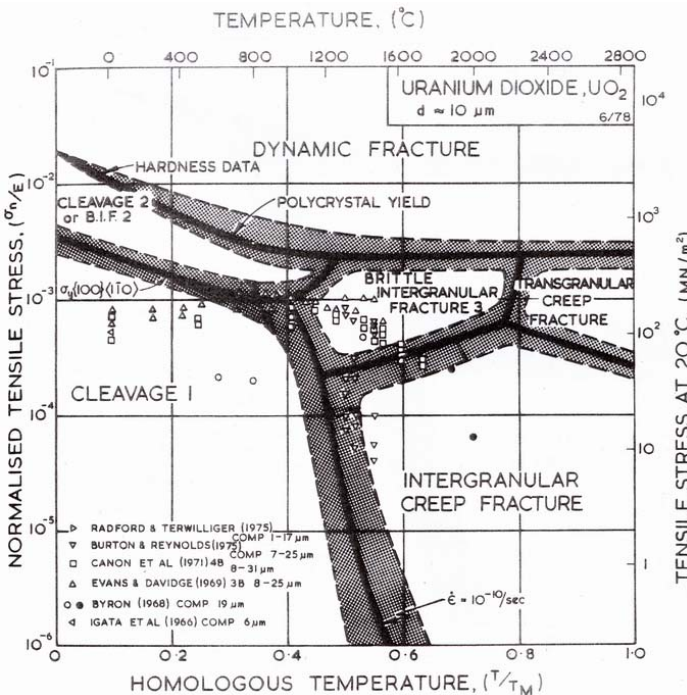


Figure 3.9 - Carte des mécanismes de rupture pour le dioxyde d'uranium.

Les références notées ici correspondent à celles utilisées par Ashby dans l'article original, quelques-unes sont notées en fin de thèse.

(Ashby 1979, Gandhi 1979)

3.3.1.2 Transition d'un comportement fragile vers viscoplastique.

Les tests réalisés ont principalement été effectués au CEA, en compression sur des pastilles réelles entières. La déformation plastique a plus particulièrement été étudiée par Guerin (Guerin 1974). Pour cette étude, un dispositif de compression spécifique a permis de tester des pastilles de dioxyde d'uranium stœchiométrique sous vide primaire. Les échantillons présentaient une faible taille de grains d'environ $5\text{ }\mu\text{m}$, et une densité de 94%.

Cette étude a mis en évidence une transition de comportement en compression du dioxyde d'uranium vers 900°C . Ainsi la Figure 3.10 reprend quelques courbes d'écroutissage en compression à une vitesse imposée de $2,33 \cdot 10^{-4}\text{ s}^{-1}$ pour différentes températures.

Tous les tests en dessous de 1000°C conduisent à la rupture de l'échantillon pour des déformations d'autant plus faibles que la température est basse. La Figure 3.11 représente des fractographies d'échantillons rompus pour 1 % de déformation à 600°C : la rupture est alors presque entièrement transgranulaire. Sur la partie (b) de la figure, l'échantillon observé a été déformé à 800°C jusqu'à une déformation de 3,5%. Les fractographies révèlent alors une rupture mixte inter et intragranulaire.

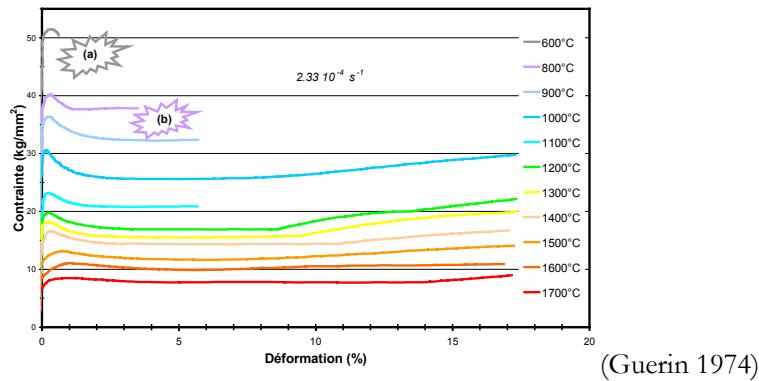


Figure 3.10 - Courbes de compression de pastilles de dioxyde d'uranium à $2,33 \cdot 10^{-4}\text{ s}^{-1}$.

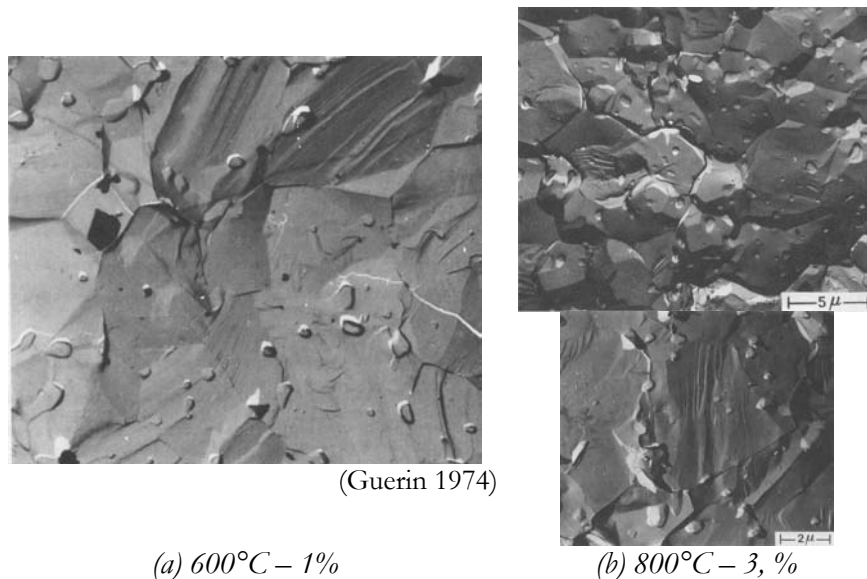
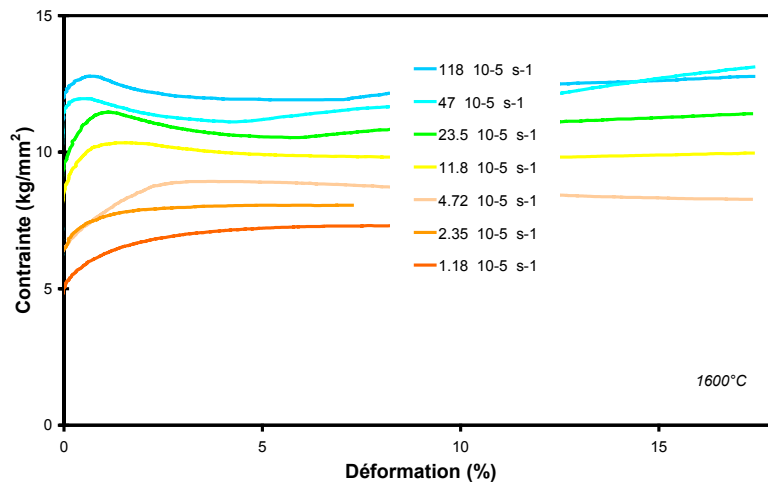


Figure 3.11 - Fractographies d'échantillons comprimés à $2,33 \cdot 10^{-4}\text{ s}^{-1}$.

3.3.1.3 Essais d'écroutissage : mise en évidence d'un pic de compression

La Figure 3.12 présente un exemple de courbes obtenues à 1 600°C pour différentes vitesses de sollicitation, variant entre $1,18 \cdot 10^{-5}$ et $118 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$. Certaines courbes présentent un crochet de compression, notamment à fortes vitesses et basses températures. Ce phénomène ne concerne apparemment que les essais réalisés en compression. Cette descente en contrainte vers un palier est certainement due à une augmentation très rapide du nombre de dislocations mobiles. Quelques matériaux présentent un tel pic, comme les monocristaux de saphir (Kronberg 1962) ou encore le fluorure de lithium (Johnston 1955). Johnston a expliqué l'allure des courbes en s'intéressant à la densité de dislocations ρ_m : pour que le phénomène se produise, il faut une faible densité initiale de dislocations mobiles, que celle-ci augmente rapidement avec la déformation, et que la vitesse des dislocations varie peu avec la contrainte.



(Guerin 1974)

Figure 3.12 - Courbes de compression de UO_2 à 1 600°C.

Dans le cas d' UO_2 , le glissement des dislocations est activé pour les grains favorablement orientés en début d'essai. Les dislocations en mouvement vont s'empiler sur les joints de grains, comme l'illustre la Figure 3.13. Cet empilement crée une concentration de contraintes, qui finit par être suffisante pour permettre le franchissement de cet obstacle. Une fois ce pic de compression passé, les dislocations se propagent dans le grain voisin : la densité de dislocations mobiles augmentant alors fortement, elle permet une relaxation de la contrainte macroscopique jusqu'à un régime stable.

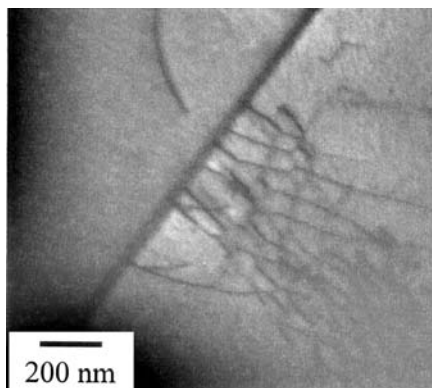


Figure 3.13 - Empilement de dislocations contre un joint de grains.

(Vivant-Dugay 1998)

Les caractéristiques de ce pic sont influencées par la température et la vitesse de sollicitation. En dessous de 1 400°C, sa largeur et la déformation correspondante varient très peu. Par contre, son amplitude décroît linéairement avec une augmentation de la température (Guerin 1974). Aux plus hautes températures, la hauteur du pic continue de diminuer, mais sa largeur augmente ainsi que l'allongement associé. Une vitesse de déformation rapide a tendance à exacerber le phénomène. Ce crochet disparaît totalement au-dessus de 1 500°C et en dessous de $4 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$.

La taille de grains joue évidemment un rôle essentiel sur la réponse du matériau (Vivant-Dugay 1998). D'une manière générale, elle modifie le niveau de contrainte atteint^x, le taux de consolidation^{xi}, et la présence éventuelle d'un pic de compression. La hauteur et la largeur du pic diminuent, lorsque la taille de grain croît, donc lorsque le nombre de joints de grains diminue (Vivant-Dugay 1998). Le crochet peut même disparaître pour des tailles de grains supérieures à 26 μm . Le processus de fabrication peut également entrer en jeu. Ainsi, une poudre broyée préalablement au frittage donnera un fritté ne présentant pas de pic de compression. Les impuretés introduites lors du broyage, qui engendre par ailleurs une forte densité de dislocations dans l'oxyde, éloignent des hypothèses de Johnston, et peuvent constituer une plausible explication.

Il faut aussi noter que ce crochet est très sensible aux conditions expérimentales : bien évidemment le rapport hauteur/diamètre des éprouvettes intervient, mais également le parallélisme des faces d'appui ou encore l'alignement du chargement (Guerin 1975).

3.3.2 Fluage

Ici sont exposés les principaux résultats sur le fluage stationnaire du dioxyde d'uranium, généralement testé en compression. Le but général de ces études a été de décrire le comportement de la céramique par une loi de la forme :

$$\dot{\epsilon} = fct(\sigma, T, \mu S) = A(g, P, x, \dots) \sigma^n e^{-\frac{Q}{RT}}$$

Cette équation tient compte de deux paramètres globaux que sont la température, intégrée dans un terme d'Arrhénius, et la contrainte avec une loi puissance. La microstructure du matériau conditionne naturellement son comportement en fluage. Elle est prise en considération via plusieurs caractéristiques comme la taille de grain g , la porosité P ou la stœchiométrie x .

3.3.2.1 Carte de fluage

La carte de fluage d'Ashby (Frost 1982), reproduite sur la Figure 3.14, constitue une bonne première approche des mécanismes rencontrés dans le fluage de UO₂. Ces cartes définissent les plages où les différents régimes sont prédominants. La construction de ces cartes suppose que, dans chaque domaine, la déformation viscoplastique est décrite par un modèle microscopique. La frontière entre deux domaines est la région où les deux équations donnent sensiblement la même estimation de la vitesse. Dans le cas du dioxyde d'uranium, le fluage peut être considéré comme inexistant en dessous de $0,4 T_M$, soit environ 1 000°C. L'ion métallique est l'espèce à diffusion la plus lente, les mouvements des atomes U vont donc contrôler les mécanismes de déformation.

^x La contrainte d'écoulement suit une loi de type Hall et Petch, fonction inverse de la racine carrée de la taille de grains.

^{xi} Le matériau présente un durcissement d'environ $2 \text{ MPa} \cdot \%^{-1}$ pour les plus gros grains. Les microstructures fines ont une tendance à l'adoucissement. Une consolidation nulle est attendue pour une taille d'environ 15 μm .

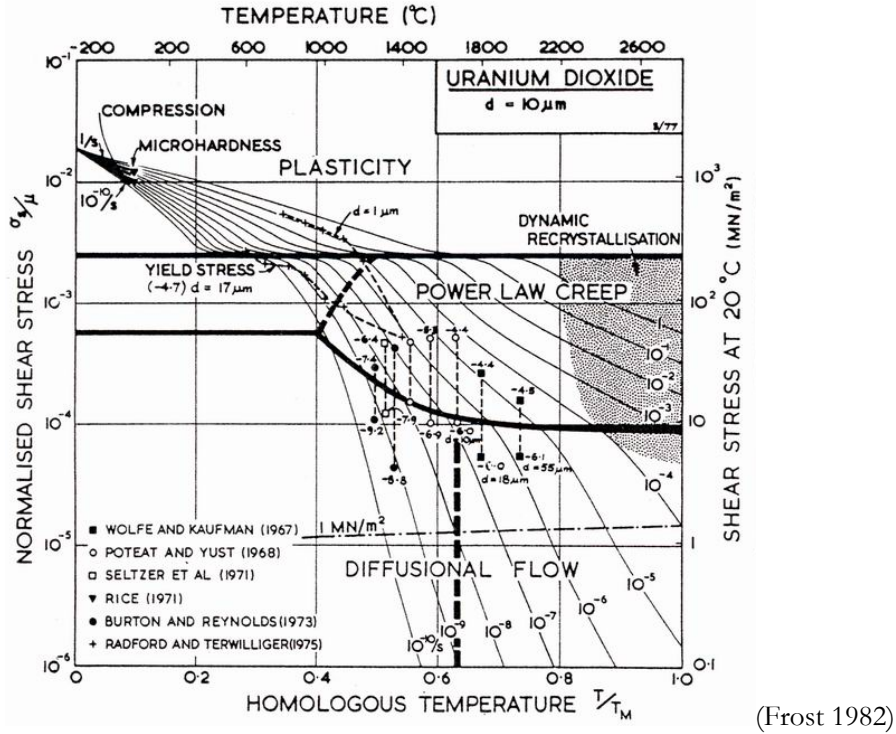


Figure 3.14 - Carte de fluage pour $UO_{2.00}$ avec une taille de grains de $10 \mu m$.

3.3.2.2 Effets des paramètres macroscopiques

De nombreuses études montrent que l'influence de la contrainte sur la vitesse de fluage peut être séparée en deux domaines : un exemple en est fourni par la Figure 3.15.

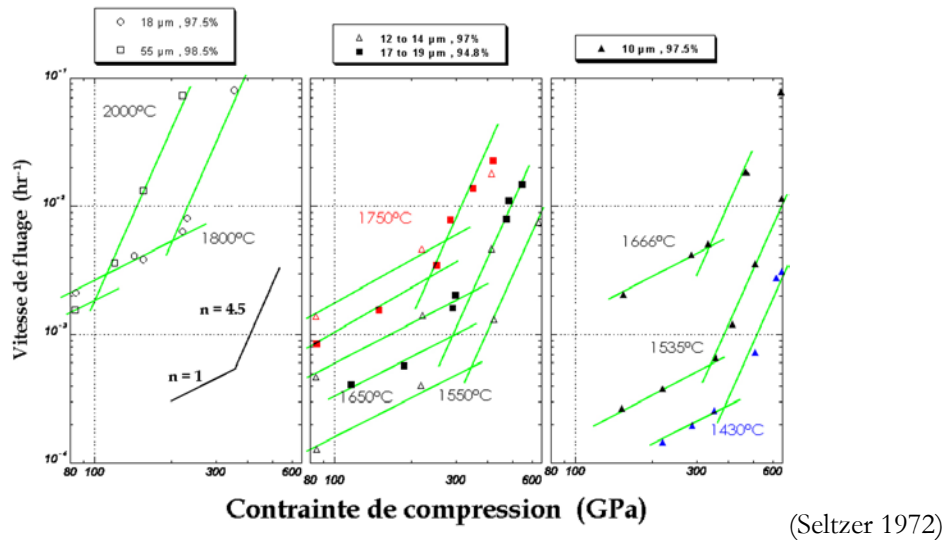


Figure 3.15 - Vitesse de fluage stationnaire en compression de UO_2 .

La contrainte de transition σ_t caractérise le changement de mécanisme de fluage. Ces deux domaines sont traditionnellement nommés domaines de faibles ou de fortes contraintes. σ_t peut être exprimée analytiquement en fonction des deux mécanismes :

$$\sigma_t = \left(\frac{A_1}{A_2} e^{\frac{Q_1 - Q_2}{RT}} \right)^{\frac{1}{n_2 - n_1}}$$

Le fluage en compression du dioxyde d'uranium est généralement décrit par la somme d'un terme de diffusion proportionnel à la contrainte et d'un terme associé aux mouvements de dislocations caractérisé par un exposant de contrainte plus élevé, entre 3 et 9. Les énergies moyennes d'activation sont respectivement de 380 kJ.mol⁻¹ et de 543 kJ.mol⁻¹, donc comparables aux énergies d'activation de la diffusion aux joints de grains et en volume de l'uranium dans UO₂. Puisque $n_2 > n_1$ et $Q_2 > Q_1$, toute augmentation de la température va déplacer la contrainte de transition σ_t vers des valeurs plus faibles : cette évolution reste toutefois limitée (de l'ordre de 4 MPa pour une variation de 250°C).

La pression partielle d'oxygène joue également un grand rôle dans le fluage du dioxyde d'uranium. Les études du comportement en fluage de combustibles non stœchiométriques révèlent une forte variation des paramètres de fluage avec l'écart à la stœchiométrie x . L'énergie apparente d'activation est, par exemple, particulièrement sensible à de faibles écarts autour de la stœchiométrie, comme l'illustre la Figure 3.16.

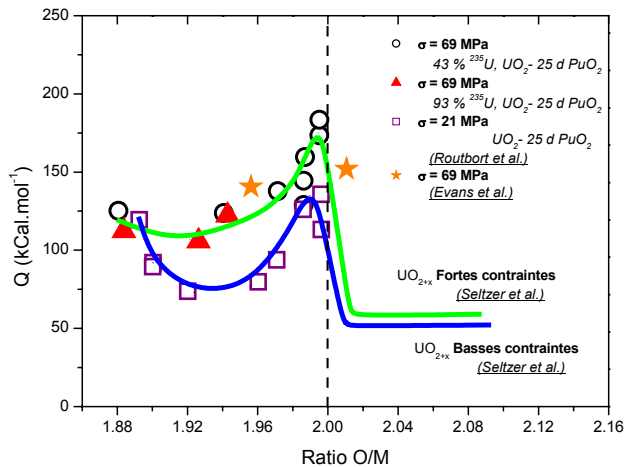


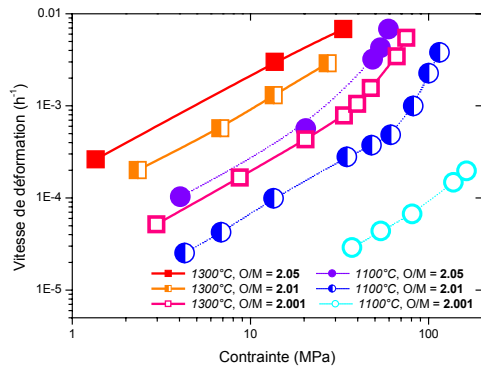
Figure 3.16 - Energie d'activation du fluage d'un combustible en fonction de l'écart à la stœchiométrie.

(Routbort 1973)

Un excès d'oxygène augmente fortement la plasticité de UO₂ en augmentant les vitesses de fluage (Seltzer 1972) et en abaissant les contraintes d'écoulement (Nadeau 1969) : ces deux phénomènes sont illustrés par la Figure 3.17 et la Figure 3.18. L'énergie d'activation diminue fortement, passant de 380 à 225 kJ.mol⁻¹, lorsque le ratio O/M varie de 2,00 à 2,01 (Seltzer 1972).

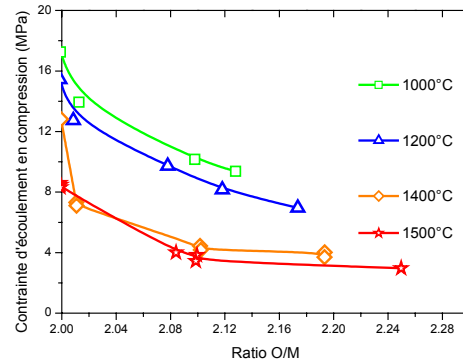
La contrainte de transition σ_t est donc fonction de l'écart à la stœchiométrie ; tout écart va diminuer celle-ci. Par exemple, à 1 100°C la contrainte s'abaisse de 120 à 40 MPa lorsque le ratio passe de 2,001 à 2,05.

Le fait que le comportement de UO₂ soit très sensible à l'écart à la stœchiométrie a amené la plupart des chercheurs (ceux du CEA notamment) à mener des campagnes expérimentales sous argon hydrogéné (Ar + 5% H₂). C'est également cet environnement que nous avons utilisé pour nos essais. Cette atmosphère est la même que celle utilisée pour fritter le combustible. Il est alors refroidi très lentement ; la céramique est en équilibre avec le potentiel oxygène, garantissant la stœchiométrie du combustible à température ambiante. Ainsi sous argon hydrogéné, le combustible n'a pas de raison évidente pour modifier la stœchiométrie du dioxyde.



(Seltzer 1972)

Figure 3.17 - Vitesse de fluage stationnaire en fonction de la contrainte appliquée, pour différentes températures et stœchiométries.

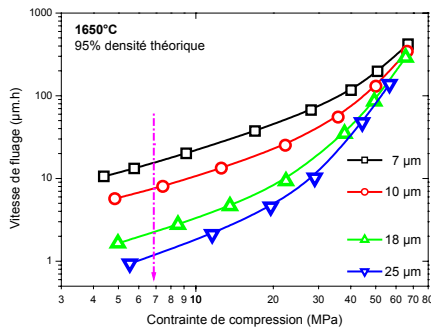


(Nadeau 1969)

Figure 3.18 - Evolution de la contrainte d'écoulement avec l'écart à la stœchiométrie.

3.3.2.3 Influence de la microstructure

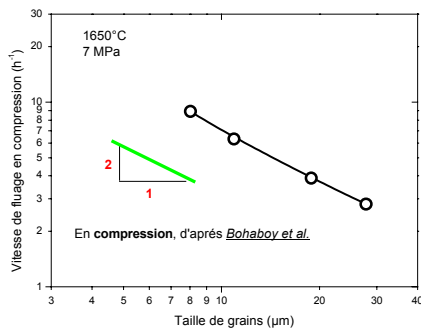
La taille de grains est la première caractéristique qui influence la réponse du matériau. Comme l'illustre la Figure 3.19, la vitesse de déformation est d'autant plus faible que la taille de grains est plus élevée. Dans le domaine des faibles contraintes, la vitesse est annoncée comme inversement proportionnelle au carré de la taille de grains ; aussi bien en compression (a et b) (Bohaby 1969) qu'en flexion (c) (Armstrong 1962). Pour les plus fortes contraintes, aucune dépendance n'a pu être mise en évidence.



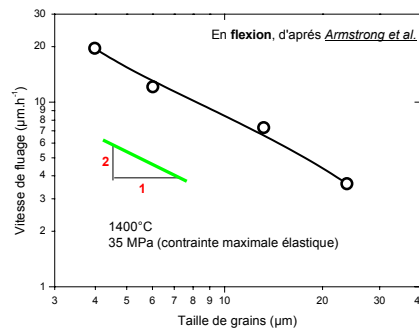
(a)

Figure 3.19 - Vitesse de fluage en fonction de la taille de grains.

(Bohaby 1969) et (Armstrong 1962)



(b)



(c)

Suivant le domaine de déformation, la taille de grain n'a pas le même effet sur la vitesse de fluage de la céramique. L'effet de la taille de grains sur la contrainte de transition σ_t s'exprime par la relation :

$$\sigma_t \propto \left(g^p e^{\frac{Q_1 - Q_2}{RT}} \right)^{\frac{1}{n_2 - n_1}}$$

Une augmentation de la taille de grains diminue la contrainte de transition.

Un autre paramètre important est la densité (i.e. la porosité) de l'échantillon. Bohaboy (Bohaboy 1969) a étudié différents matériaux dont la porosité variait entre 2 et 8 %. Les résultats obtenus en compression sont reportés sur la Figure 3.20. Ces auteurs ont quantifié l'influence de la densité par la relation : $\dot{\epsilon} \propto \frac{1}{\rho_R - Cte}$, où ρ_R est la densité relative de l'échantillon. Cette loi doit être utilisée pour des valeurs de densités supérieures à la constante introduite, et n'est applicable que pour des taux de porosité inférieurs à 8 %.

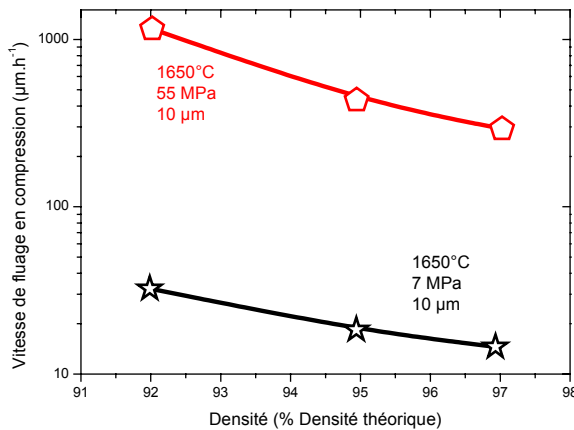


Figure 3.20 - Influence de la densité sur la vitesse de fluage.

(Bohaboy 1969)

3.3.2.4 Mécanismes de déformation

Afin d'identifier les mécanismes actifs, les auteurs procèdent généralement à une comparaison entre les paramètres de fluage mesurés expérimentalement et ceux prévus par les différents modèles théoriques de mécanismes de déformation. Un tel rapprochement ne permettant que rarement une identification formelle d'un mécanisme de fluage, il se doit d'être complété par une observation systématique des microstructures, par exemple (Dherbey 2000). Il faut remarquer que la plupart de ces modèles de déformation a été développée pour les métaux, puis adaptée avec plus ou moins de succès au cas des céramiques.

Nous n'allons pas ici passer en revue tous les modèles existant dans la littérature, sachant que de nombreuses revues bibliographiques ont déjà été effectuées et sont facilement disponibles (Cannon 1983, Cannon 1988, Gros 1991, Vivant-Dugay 1998, Dherbey 2000). D'une manière générale, la vitesse de fluage stationnaire est exprimée sous la forme :

$$\dot{\epsilon} = \frac{AN_A Gb}{RT} D \left(\frac{b}{g} \right)^p \left(\frac{\sigma}{G} \right)^n$$

avec les différents paramètres :

- ✓ N_A le nombre d'Avogadro ;
- ✓ R la constante des gaz parfaits ;
- ✓ A une constante caractéristique du matériau ;
- ✓ G le module de cisaillement ;
- ✓ b le vecteur de Burgers ;
- ✓ g la taille de grains ;
- ✓ T la température absolue ;
- ✓ σ la contrainte appliquée.

D est le coefficient de diffusion et peut s'écrire : $D = D_0 e^{\frac{-Q}{RT}}$. Les modèles théoriques de mécanismes de déformation sont caractérisés par les triplets de valeurs (p , n , Q) ; Q est l'énergie d'activation, p est la sensibilité à la taille de grain, n à la contrainte. Les mécanismes peuvent alors être classés suivant la valeur de p :

- ✓ $p \neq 0$, les joints de grains entrent en jeu, c'est le fluage diffusion, l'exposant de contrainte est généralement l'unité ; cela correspond au domaine de faibles contraintes pour le dioxyde d'uranium.
- ✓ $p = 0$, le mécanisme s'opère à l'intérieur des grains, c'est le fluage par mouvements de dislocations. Il se rencontre généralement aux plus fortes contraintes et n est alors plus élevé.

Domaine des faibles contraintes

L'exposant de contrainte est faible et proche de l'unité. La vitesse de fluage est sensible à la taille de grain avec un exposant p compris entre 2 et 3. Cette sensibilité à la taille de grains est caractéristique de mécanismes de déformation diffusionnels. Une grande partie des modèles décrivant ces mécanismes est reprise par le Tableau 3-3.

Mechanism	n	p	Q	Reference
(i) <i>Lifshitz sliding</i>				
Sliding accommodated by diffusion:				
(a) Nabarro–Herring creep	1	2*	Q_1	Nabarro, Herring
(b) Coble creep	1	3	Q_{gb}	Coble
Sliding accommodated by intragranular flow across the grains	1	1	Q_{gb}	Crossman and Ashby
(ii) <i>Rachinger sliding</i>				
With a continuous glassy phase at the boundary	1	1	Q_{pb}	Orowan
Without a glassy phase:				
(a) sliding accommodated by formation of grain boundary cavities	2	1	Q_1	Langdon
(b) sliding accommodated by formation of triple-point folds	3.5†	2	Q_1	Gifkins

*These values may change to $n = 2$ and $p = 1$ if the grain boundaries are not perfect sources and sinks for vacancies

†Gifkins obtained a stress exponent of $n = 4.5$ and a direct proportionality between the rate of sliding and the subgrain size, λ . The exponent of $n = 3.5$ is obtained by putting $\lambda \propto \sigma^{-1}$.

D diffusion en volume

D diffusion aux joints de grains

(Cannon 1983)

Tableau 3-3 - Paramètres caractéristiques des modèles de fluage diffusion les plus courants.

Pour UO_2 , les paramètres de fluage correspondraient aux modèles proposés par Nabarro-Herring ou Coble. L'énergie d'activation est en moyenne de 390 kJ.mol⁻¹. De nombreux auteurs ont adopté comme valeur de référence l'énergie d'autodiffusion de l'ion U^{4+} , publiée par (Belle 1969), entre 300 et 440 kJ.mol⁻¹. Les valeurs des trois paramètres ont amené Bohaboy ou Seltzer à conclure à un mécanisme de Nabarro-Herring. Dans un travail plus récent de 1989 sur la diffusion dans UO_2 , Knorr a publié une nouvelle valeur de 377 kJ.mol⁻¹ comme énergie de diffusion aux joints de grains.

Dès lors, le mécanisme de fluage peut tout aussi bien s'accorder avec le modèle de Coble (Burton 1973, Frost 1982). Duguay (Vivant-Dugay 1998) a montré que Coble prédit correctement les vitesses expérimentales, alors que Nabarro-Herring les sous-estime systématiquement de plusieurs ordres de grandeur. Actuellement, il est généralement admis que le dioxyde d'uranium se déforme essentiellement suivant un fluage de type Coble (Dherbey 2000) sous faible charge en compression.

Domaine des fortes contraintes

Au-dessus de la contrainte de transition, le fluage est souvent considéré comme indépendant de la taille de grains et avec un exposant de contrainte élevé de l'ordre de 4 à 10. L'influence de la température est caractérisée par une énergie d'activation d'environ 540 kJ.mol⁻¹, similaire aux énergies d'autodiffusion de l'uranium dans UO₂ publiées par Knorr. Cela évoquerait des mécanismes de fluage-dislocations, comme les modèles de Weertman ou Barrett et Nix, comme illustré dans le Tableau 3-4.

Mechanism	n	Q	Reference
Dislocation glide and climb, controlled by climb	4.5	Q_l	Weertman
Dislocation glide and climb, controlled by glide	3	Q_{cl}	Weertman
Dissolution of dislocation loops	4	Q_l	Chang
Dislocation climb from Bardeen-Herring sources	3	Q_l	Nabarro
Non-conservative motion of jogged screw dislocations	5	Q_p	Barrett and Nix
Nabarro-Herring creep at subgrain boundaries	3†	Q_l	Friedel
Climb of dislocations in two-dimensional subgrain boundaries	3	Q_l	Ivanov and Yanushkevich
Climb of dislocations in subgrain boundaries of finite width	4	Q_l	Blum
Recovery creep assuming slip distance is independent of mesh size	4	Q_l	Lagneborg
Recovery creep including distribution of dislocation link lengths	3	Q_l	Öström and Lagneborg
Network coarsening by jog-controlled climb	3	Q_l	Gittus
Climb of dislocation links within a three-dimensional network:			
(i) Average slip distance equals mesh spacing of network	3	Q_l	Evans and Knowles
(ii) Slip distance is independent of mesh size	5	Q_p	Evans and Knowles
	4	Q_l	Evans and Knowles
	6	Q_p	Evans and Knowles

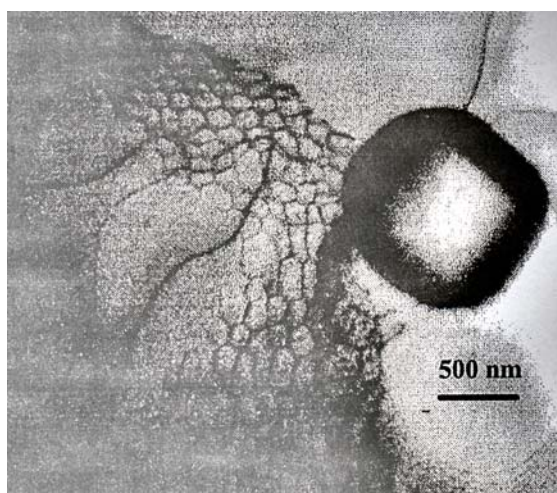
*These theories lead to a stress exponent of n and an activation energy for lattice self-diffusion, Q_l , at high temperatures, and a stress exponent of $(n+2)$ and an activation energy for pipe diffusion, Q_p , at low temperatures. A similar transition to $(n+2)$ and Q_p is also believed to occur in dislocation glide and climb controlled by climb.

†The original theory of Barrett and Nix gives $n=4$ by putting the density of mobile screw dislocations, ρ_{ms} , proportional to σ^2 . The value of $n=3$ is obtained by making the more reasonable assumption that ρ_{ms} is proportional to σ^3 .

Diffusion en volume

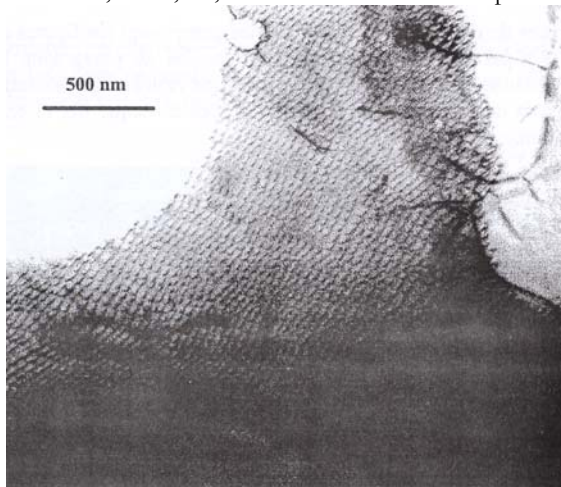
(Cannon 1983)

Tableau 3-4- Paramètres caractéristiques du fluage pour les modèles de fluage dislocations les plus courants.



1 465°C, $\epsilon = 3,7\%$, fluage sous 60 MPa

1 465°C, $\epsilon = 3,3\%$, vitesse de déformation imposée

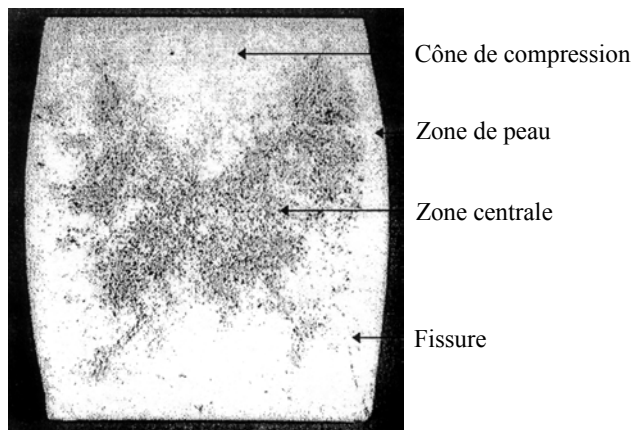


(Dherbey 2000)

Figure 3.21 – Structure de dislocations dans UO₂ déformé à 1 465°C.

Des observations en microscopie en transmission ont révélé des structures de dislocations (Yust 1969, Lefebvre 1976, Alamo 1978). La Figure 3.21 illustre un exemple de micrographie obtenue par (Dherbey 2000) sur des échantillons déformés en compression. Des réseaux hexagonaux y sont nettement visibles.

L'exposant de contrainte mesuré dans ce domaine, reste souvent très élevé par rapport aux prévisions des modèles théoriques de déformation. Peut-être peut-on voir là un effet de l'endommagement susceptible d'être important pour les fortes contraintes.



(Dherbey 2002)

Figure 3.22 - Coupe d'une pastille de UO_2 déformée de 16,4 %.

De simples observations optiques (Vivant-Dugay 1998, Dherbey 2000) révèlent clairement que la déformation n'est pas répartie uniformément dans la pastille, comme l'illustre la Figure 3.22. A cause des frottements, l'éprouvette ne conserve évidemment pas sa forme cylindrique et tend à se déformer en tonneau. Après fluage, les pastilles ne présentent pas de fissure dans les régions proches des appuis. Des surfaces coniques définissent cette zone confinée par les frottements aux appuis : ce sont les « cônes de glissement » ou « cônes de compression ». L'élancement de l'éprouvette joue un rôle sur la géométrie de ces surfaces, à l'intérieur desquelles la composante hydrostatique du tenseur des contraintes est élevée. Loin de ces zones, le matériau est notamment soumis à des tensions radiales qui, associées au cisaillement, maximum aux limites des cônes, définissent les directions de fissurations privilégiées qui se rejoignent pour engendrer une fissure principale le long de l'axe de compression. Une observation expérimentale de ces phénomènes est illustrée par la Figure 3.23.



Figure 3.23 - Déformation en tonneau et fissuration de pastilles UO_2 sollicitées en fluage.

(Vivant-Dugay 1998)

En raison de l'incapacité du matériau à accommoder les contraintes par diffusions et/ou mouvement de dislocations, des cavités intergranulaires, puis des décohésions, se forment essentiellement aux joints de grains parallèles à la contrainte appliquée : cet endommagement est clairement visible sur la Figure 3.24.

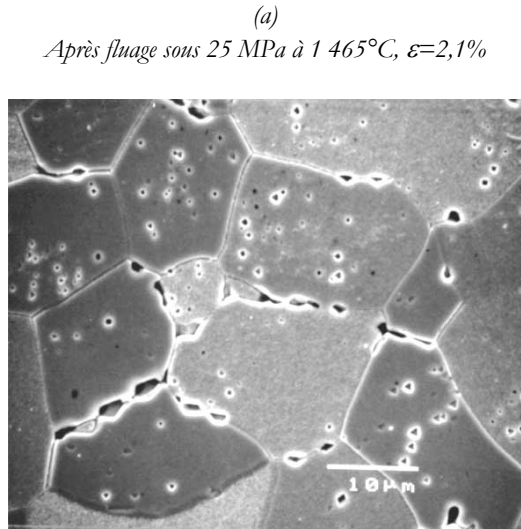
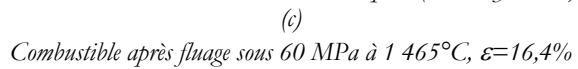
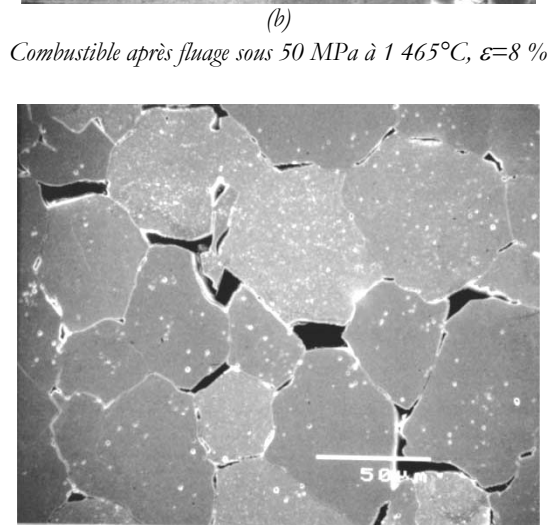


Figure 3.24 - Microstructures typiques observées au centre des pastilles déformées.

Combustible de taille de grains 10 μm



D'après (Dherbey 2002)

La densité et la taille des cavités augmentent avec le taux de déformation, Figure 3.24 sur la partie (a). Pour de plus forts niveaux de déformation, la coalescence provoque une décohésion totale du joint, i.e. une microfissure, Figure 3.24 sur la partie (b). Enfin, les microfissures se propagent et coalescent à leur tour, conduisant à la ruine du matériau par fissuration macroscopique, Figure 3.24 sur la partie (c).

Une quantification de cet endommagement a été réalisée par Dherbey par méthode des interceptes. Pour cela, sur chaque micrographie des lignes d'interceptes sont tracées, l'épaisseur globale ΔD de décohésions est mesurée sur chaque ligne, comme illustrée par la Figure 3.25. La déformation due à cette microfissuration s'exprime par :

$$\epsilon_{\mu\text{fissures}} = \frac{\Delta D}{l_0 - \Delta D}$$

pour une ligne, l_0 représentant la longueur totale analysée.

Dherbey a ainsi quantifié la part de déformation due à l'endommagement sur la déformation totale de l'échantillon. Le résultat est montré sur la Figure 3.26. La part de déformation causée par la microfissuration augmente avec la contrainte et s'élève à près de 50% à 60 MPa pour l'oxyde d'uranium. Un tel niveau d'endommagement montre qu'il serait sans doute nécessaire d'avoir recours à des modèles de fluage-endommagement et non de fluage simple.

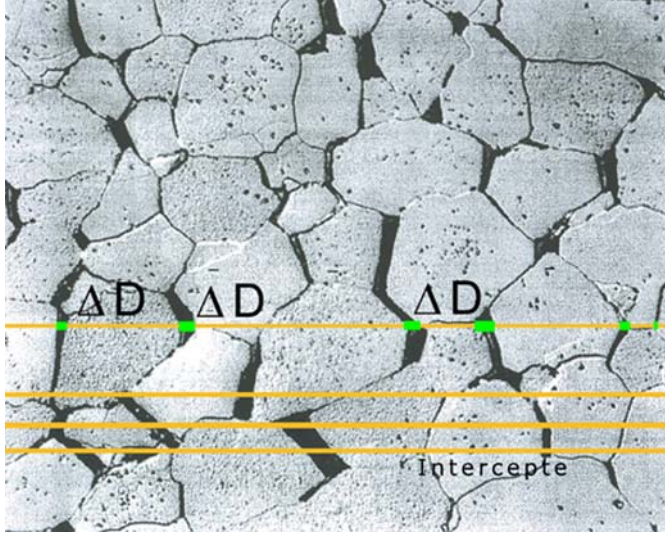


Figure 3.25 - Méthode des interceptes pour quantifier l'endommagement par microfissuration.

(Dherbey 2002)

Fluage sous 50 MPa à 1 465°C, $\varepsilon = 8,7\%$

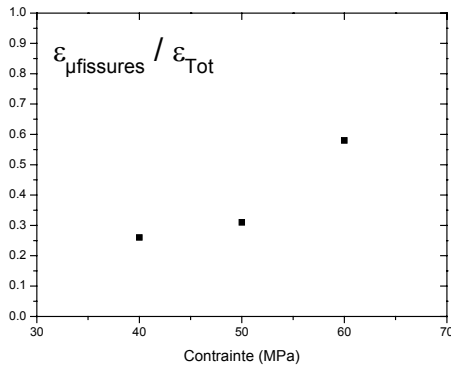


Figure 3.26- Influence de la microfissuration sur la déformation d'UO₂ à 1 465°C.

(Dherbey 2002)

3.3.2.5 Description à l'aide d'une loi de fluage stationnaire

La description la plus complète du fluage sous contraintes uniaxiales a été fournie par (Bohaby 1969). Sur la plage de 1 400 à 1 800°C, la vitesse de fluage stationnaire apparent est exprimée par la relation :

$$\dot{\varepsilon}_B = \frac{0.3918}{(\rho - 87.7)g^2} \sigma e^{\frac{377000}{RT}} + \frac{2.034 \times 10^{-25}}{\rho - 90.5} \sigma^{4.5} e^{\frac{552000}{RT}} \quad (s^{-1})$$

où σ est la contrainte de compression en Pa, T la température absolue, ρ la densité en pourcentage de la densité théorique et g la taille de grains en microns. Slagle a prolongé cette loi pour les plus hautes températures, jusqu'à 2 600°C (Slagle 1984). Pour ces très hautes températures, la

modification de la microstructure est prise en compte par un terme caractéristique de la très haute température :

$$\dot{\epsilon}_{Tot} = \dot{\epsilon}_B + \dot{\epsilon}_{HT} = \dot{\epsilon}_B + C\sigma^n e^{\frac{Q}{RT}}$$

où C est fonction de l'évolution de la microstructure (C diminue lorsque la taille de grains augmente). L'énergie d'activation Q est évaluée à 1255 kJ.mol⁻¹, valeur très élevée à considérer avec beaucoup de précautions étant données les conditions expérimentales. En fait, les auteurs ont considéré un exposant de contrainte variant en fonction de la température, de 6,5 à 2 100°C à 3,5 à 2 600°C. Cette dernière loi n'a pas réellement de fondement physique justifié, elle correspond plus à une extrapolation phénoménologique empirique des lois utilisées classiquement.

Les nombreux essais réalisés récemment aux CEA n'ont pas toujours permis de retrouver les résultats prévus par la loi de Bohaboy. Un gros travail a donc été effectué afin de trouver une loi plus adaptée, qui a donné naissance au modèle dit « LPCC 98 », identifié sur plus de 120 essais, et schématisé sur la Figure 3.27.

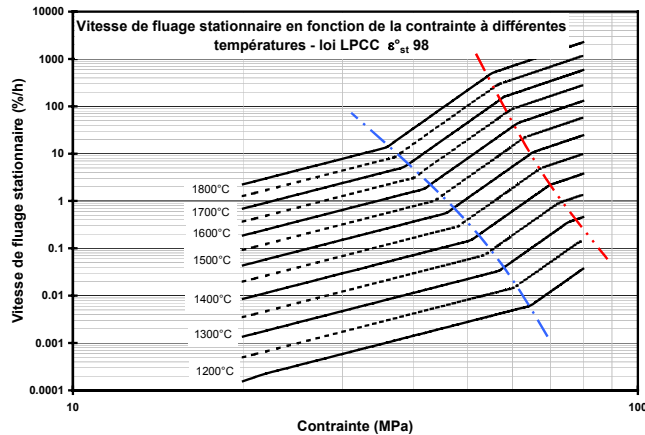


Figure 3.27 - Loi LPCC 98 utilisée par le CEA pour décrire les vitesses de fluage stationnaire.

Cette loi rend compte des deux domaines de comportement du matériau. A faibles contraintes, l'équation traduit une proportionnalité de la vitesse de fluage à l'inverse du carré de la taille de grains, avec une énergie d'activation de l'ordre de 400 kJ.mol⁻¹ et un exposant de contrainte de 3. Notons que cette valeur peut paraître élevée pour un mécanisme de diffusion aux joints de grains. Pour les vitesses de déformation plus élevées, le fluage serait contrôlé par le mouvement des dislocations, et l'énergie d'activation correspond alors à celle de la diffusion en volume, 530 kJ.mol⁻¹, mais l'effet de la taille de grain reste inchangé. Dans cette zone, l'exposant de contrainte est très élevé, environ 8. Pour les valeurs extrêmes de vitesses et de contraintes, une loi limite est utilisée, qui correspond au comportement de pastilles dopées. Bien évidemment, la porosité influence la valeur numérique de certains coefficients de ces équations.

Ce modèle a été complété afin de prendre en compte les effets de l'irradiation. Pour cela il a été introduit un terme multiplicatif qui correspond à l'amplification du fluage thermique et un terme supplémentaire correspondant au fluage d'irradiation proprement dit :

$$\dot{\epsilon}_S^\phi = \dot{\epsilon}_S^{LPCC} \times k^\phi + \dot{\epsilon}^\phi$$

Il n'est pas simple d'ajuster les paramètres en raison du faible retour d'expériences sur le comportement de combustibles irradiés. Toutefois la vitesse du fluage d'irradiation est proportionnelle à la contrainte et au taux de fission $\dot{\phi}$, et possède une très faible énergie d'activation.

Un travail récent (Dherbey 2000, Dherbey 2002), appuyé par de nombreuses observations en microscopie en transmission, a proposé de décrire le fluage stationnaire sous la forme unifiée :

$$\dot{\epsilon} = \dot{\epsilon}_m \left(\frac{1}{g^p} \right) e^{\frac{-Q_{vol}}{RT}} \sinh \left(\frac{\sigma V^*}{kT} \right)$$

Le volume d'activation V^* est proche de $70b^3$, l'énergie d'activation s'apparente à celle d'autodiffusion de U^{4+} . L'exposant p de taille de grains est estimé à 1,3. Cette expression permet de décrire l'ensemble des deux domaines traditionnels. Dans cette approche, les auteurs ont disposé de nombreuses observations microstructurales et n'ont pas mis en évidence de changement de mécanismes de déformation.

3.4 Conclusion

Dans ce chapitre, nous nous sommes intéressés au comportement mécanique à chaud du dioxyde d'uranium. En effet, au cours des rampes de puissance en réacteur, le combustible a tendance à contraindre fortement la gaine. Une solution pour éviter la rupture de cette première barrière de sûreté, est de relaxer les contraintes, notamment en exploitant les capacités de déformations viscoplastiques ou de fissuration du combustible.

Tout d'abord, la fabrication des pastilles doit répondre à un cahier des charges sévère, en assurant les propriétés finales de la céramique, tout en s'insérant dans le cycle global du combustible. En général, les cylindres sont obtenus par un procédé type DCN puis crayonnés. Le dioxyde d'uranium cristallise dans une structure de type fluorine CaF_2 . Ce système particulier lui confère quelques propriétés remarquables. Il existe un large domaine de sous et sur stœchiométrie. Enfin, les ions uranium U^{4+} y sont nettement moins mobiles ; ce sont donc eux qui vont limiter tous les processus diffusionnels, le fluage en particulier.

Le comportement mécanique de cette céramique est depuis longtemps exploré. C'est surtout des essais de compression qui ont permis de caractériser le fluage de la céramique nucléaire. Lors de tels essais, la transition du comportement fragile vers le viscoplastique se situe aux environs de $1\ 000^\circ\text{C}$. De plus, lors d'essais à vitesse de déformation imposée, l' UO_2 présente la particularité d'un pic de compression. Ce pic dépend fortement des conditions de sollicitation (température, vitesse et géométrie), mais surtout de la microstructure (taille de grains) de l'éprouvette. L'explication en termes microstructuraux de la présence de ce pic n'est pas claire, mais semble liée à une densité de dislocations initiale faible.

De nombreuses études montrent que le fluage du dioxyde d'uranium est caractérisé par deux domaines, à faibles ou fortes contraintes. La contrainte de transition entre les deux régimes dépend de la température et de la microstructure du matériau. Pour les faibles contraintes, le dioxyde d'uranium se déforme suivant un fluage de type Coble. L'exposant de contrainte n est faible, proche de l'unité, et l'énergie d'activation correspond à l'énergie de diffusion aux joints de grains. La vitesse de fluage dépend de la taille de grains par une loi puissance, dont l'exposant p varie entre 2 et 3. Pour les fortes contraintes, l'exposant de contrainte est très élevé, de 4 à 10, et l'énergie d'activation s'apparente à celle d'autodiffusion de U^{4+} . Les déformations sont alors contrôlées par le mouvement des dislocations. Ces exposants de contraintes élevés peuvent être expliqués en partie par l'application de contraintes de compression. Les frottements aux appuis engendrent une répartition hétérogène des contraintes dans la pastille, qui favorise l'apparition de l'endommagement aux fortes

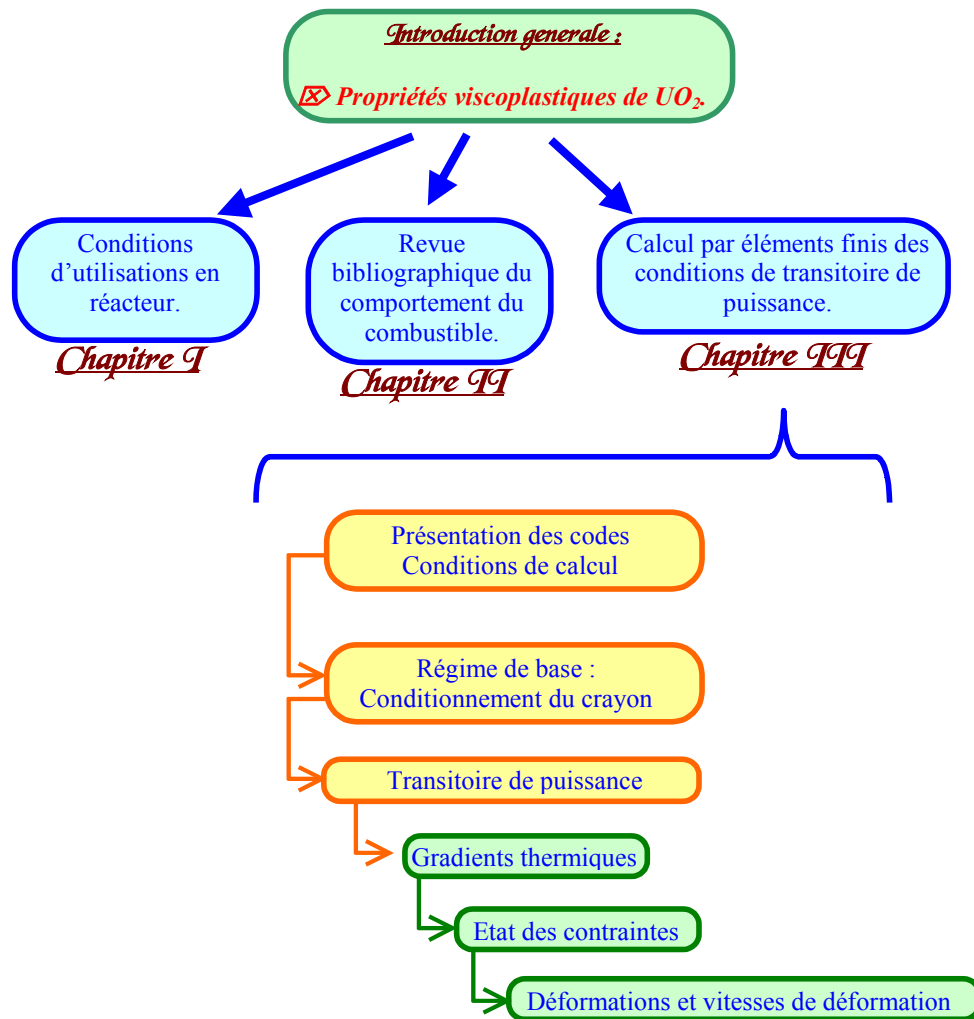
déformations. Cet endommagement pourrait expliquer en partie les fortes valeurs des exposants de contrainte calculés dans cette zone par les différents auteurs.

Bohaboy a fourni une première description globale du fluage. Cependant, avec les nouveaux essais, le CEA a pu développer un nouveau modèle, dit LPCC 98, qui décrit les deux domaines, en fonction de la température et de la contrainte. Il a été enrichi de composantes permettant de traiter le cas des températures extrêmes.

Enfin, pour terminer ce récapitulatif, deux remarques s'imposent, concernant les limites des bases expérimentales disponibles et de leurs interprétations. Les déformations atteintes lors de la plupart des essais sont très importantes (plusieurs %) et ont souvent conduit à un endommagement du matériau. De plus, au niveau des interprétations, seul le régime stationnaire du fluage a été considéré. Nous verrons dans le chapitre suivant que ces remarques prendront une certaine importance quand on considèrera les conditions de sollicitation réelles du combustible en réacteur.

4 Sollicitations thermomécaniques en transitoire de puissance incidente





4 SOLLICITATIONS THERMOMECHANIQUES EN TRANSITOIRE DE PUISSANCE

- 4.1 CONDITIONS D'UTILISATION DES CODES DE CALCUL
- 4.2 REGIME DE BASE, CONDITIONNEMENT DU CRAYON
- 4.3 RAMPE DE PUISSANCE, EVOLUTION DE LA TEMPERATURE
- 4.4 RAMPE DE PUISSANCE, EVOLUTION DES CONTRAINTES MECANIQUES
- 4.5 CONCLUSION

4.1 Conditions d'utilisation des codes de calcul

Afin de caractériser au mieux les transitoires de puissance et donc les conditions d'IPG qui peuvent s'en suivre, des simulations numériques ont été développées par EDF (P. Thévenin) et par le CEA (C.Struzik). L'Interaction Pastille-Gaine est associée à des mécanismes assez complexes et pluridisciplinaires ; les codes de calculs dédiés à la mécanique ne sont pas adaptés à ce genre de problème. Aussi, des codes de calculs spécifiques dits "globaux" ont été développés, comme le code CYRANO3 par EDF, ou METEOR au CEA. La modélisation adoptée dans ces codes est une modélisation unidimensionnelle axisymétrique^{xii}. Ces logiciels se basent sur des cartes de puissance caractérisant le cœur du réacteur. A chaque crayon est associée une puissance, répartie sur la longueur du crayon, en 57 segments par exemple pour CYRANO3. Alors le programme considère une tranche axiale du crayon où une puissance linéique est imposée. Pratiquement, CYRANO3 utilise usuellement, comme schématisé sur la Figure 4.1, dix mailles radiales par quartier de pastille de combustible et cinq dans la gaine ; il tient compte également de l'existence éventuelle d'un jeu entre la gaine et l'oxyde représenté par une seule maille. Les conditions aux limites en puissance sont complétées en imposant la température extérieure de la gaine.

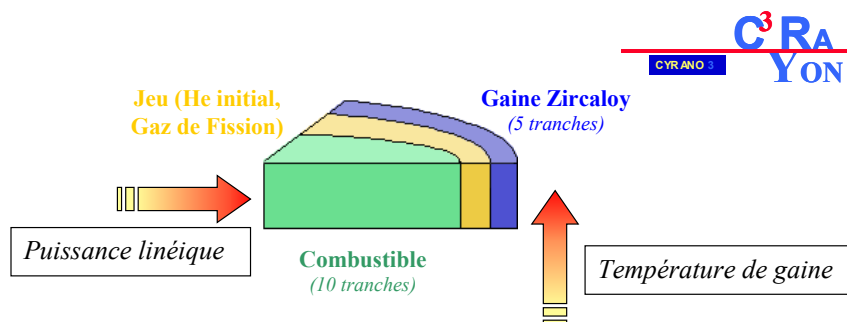


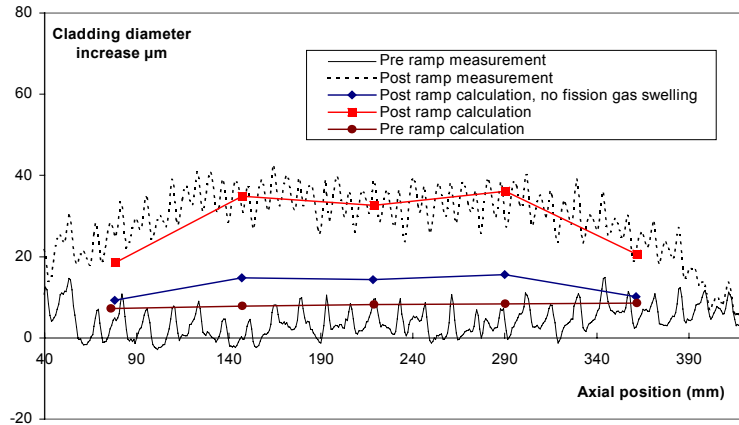
Figure 4.1 - Principe de fonctionnement du logiciel CYRANO33
avec les conditions aux limites en températures et en puissance.

CYRANO3 ou METEOR disposent des propriétés des matériaux et prennent en compte leurs évolutions avec la température et l'irradiation. Ils peuvent rendre compte également de phénomènes plus complexes comme la fracturation de la pastille ou encore le gonflement de celle-ci sous irradiation. Nous allons ici n'utiliser que les résultats décrivant la pastille. Mais ces codes globaux peuvent décrire l'ensemble des évolutions du crayon. Par exemple, sur la Figure 4.2 (Garcia 2002), est présenté le résultat d'un calcul effectué à l'aide de METEOR lors d'une rampe de puissance. Ce calcul montre l'évolution du diamètre de la gaine en fonction de l'altitude considérée.

^{xii} avec néanmoins des « artifices » pour prendre en compte des effets 2 ou 3D.

Figure 4.2 - Calcul effectué sur METEOR : diamètre extérieur du crayon en fonction de l'altitude pré et post rampe de puissance.

(Garcia 2002)



Nous nous contenterons ici d'un simple calcul thermoélastique pour illustrer qualitativement les phénomènes mécaniques mis en jeu. Ce calcul rapide est effectué à l'aide de CYRANO3, les résultats sont évidemment similaires à ceux que pourraient fournir METEOR. En fin de thèse nous essayerons de modéliser une rampe de puissance en utilisant une loi de comportement mécanique elasto-viscoplastique. Nous effectueront alors une comparaison avec un calcul réalisé sur METEOR, qui peut tenir compte du fluage de UO_2 .

4.2 Description du régime de base, conditionnement du crayon

L'historique de puissance retenu est celui du crayon I04 (5108 GRA5 2 CY I04/4 OSIRIS). Ce crayon a été irradié durant deux cycles de base en réacteur. Une fois conditionné, il subit une rampe rapide de puissance.

L'évolution de la puissance est schématisée sur la Figure 4.3. Le crayon a subi en fait deux cycles à environ 220 W/cm dans le réacteur EDF Gravelines. Etant alors dans un état conditionné, il est transféré dans le réacteur expérimental du CEA, OSIRIS, où il est remplacé dans des conditions thermomécaniques équivalentes à la fin de son deuxième cycle, il est reconditionné. Ce crayon est placé dans un réacteur expérimental afin de mieux suivre son comportement en étant beaucoup plus instrumenté. Toutefois il subit un transitoire incidentel de puissance de classe II (potentiel), représentatif de l'utilisation anormale d'un réacteur industriel^{xiii}.

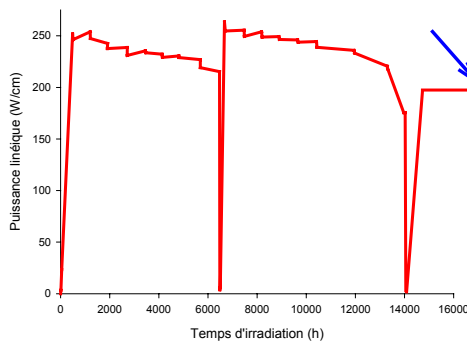


Figure 4.3 - Historique de puissance du crayon I04, soit deux cycles de base puis une phase de reconditionnement.

^{xiii} Cela ne correspond pas à un fonctionnement courant (normal) du réacteur.

Connaissant cette histoire, il est possible d'en déduire la température en chaque point de la pastille, schématisée sur la Figure 4.4. Les températures considérées sont faibles ; la température centrale se situe aux environs de 950°C alors qu'en surface, elle ne dépasse pas 400°C. A ces températures, le potentiel de déformation viscoplastique d'UO₂ est très limité : seul le fluage d'irradiation pourrait expliquer la déformation de l'oxyde d'uranium en régime de base.

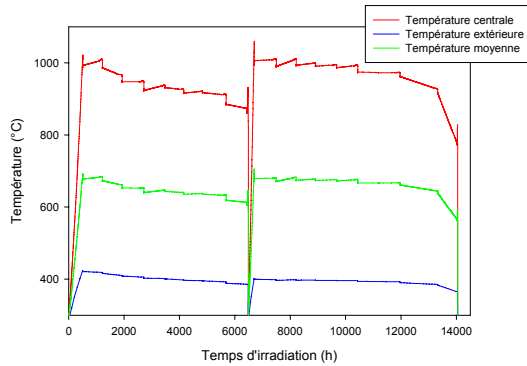


Figure 4.4 - Températures atteintes dans la pastille en cours d'irradiation.

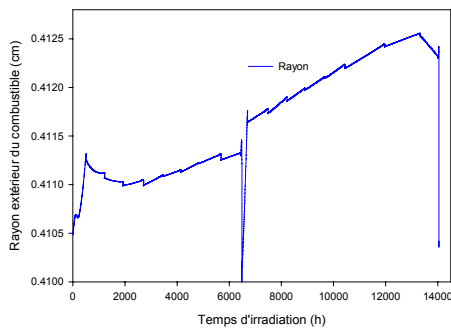


Figure 4.5- Evolution du rayon extérieur de la pastille au cours des deux premiers cycles d'irradiation en régime de base

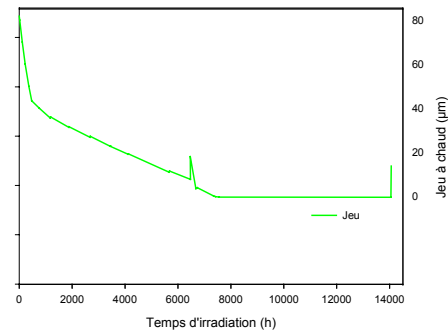


Figure 4.6 - Diminution du jeu pastille-gaine au cours des deux premiers cycles d'irradiation en régime de base

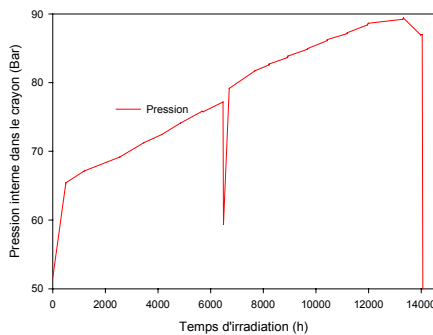


Figure 4.7- Pression interne dans le crayon au cours des deux premiers cycles d'irradiation en régime de base

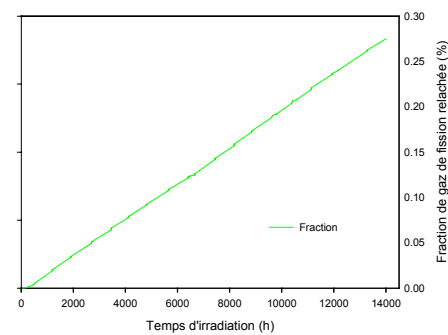


Figure 4.8 – Fraction des gaz de fission relâchés au cours des deux premiers cycles d'irradiation en régime de base

Le code de calcul CYRANO3 permet de simuler la fragmentation de la pastille. En fait, une contrainte à rupture, traduite en gradient thermique maximal admissible, est intégrée au programme et permet de déduire le nombre de fragments associé à une puissance linéique donnée. En moyenne, pour une puissance linéique de 200W/cm, la céramique est fractionnée en huit parts radiales et quatre tranches axiales. De même pour le code METEOR, une contrainte maximale de traction admissible par UO₂ est introduite pour décrire la rupture de la pastille.

Cette fissuration a lieu dès la première mise en puissance du réacteur et n'est plus modifiée par les cycles d'irradiation suivants. L'évolution de ce nombre est possible si le gradient thermique augmente dans la pastille au cours de son séjour en réacteur. Le programme permet également de prévoir l'évolution dimensionnelle du combustible : l'exemple du rayon extérieur est donné sur la Figure 4.5. Après dilatation thermique et fracturation de la pastille, l'oxyde commence à se densifier sous l'effet de la température puis, rapidement, augmente de volume sous l'effet de l'irradiation. Une conséquence directe est bien évidemment une diminution du jeu pastille-gaine illustrée par la Figure 4.6. Il y a contact dès le début du deuxième cycle, le crayon est alors conditionné pour une puissance d'environ 200 W/cm. La pression interne du crayon, représentée sur la Figure 4.7, augmente fortement, passant de 65 à près de 90 bars en fin de deuxième cycle. Cette valeur s'oppose à la pression externe du caloporteur (155 bars à chaud). Cette hausse de pression est essentiellement due à la perte de volume libre dans le crayon, donc principalement au gonflement solide de l'oxyde et au fluage de la gaine sous l'effet du caloporteur. En effet, les faibles températures rencontrées dans ce régime de base n'autorisent pas un relâchement important des gaz de fission, comme l'illustre la Figure 4.8.

4.3 Description d'une rampe de puissance, évolution de la température

Après ces deux cycles de base, le crayon subit une courte période de reconditionnement, à environ 200 W/cm, suivie par une rapide montée en puissance jusqu'à 400 W/cm en moins de deux minutes ($100 \text{ W.cm}^{-1}.\text{min}^{-1}$). Ce cycle est reproduit sur la Figure 4.9. Cette hausse de puissance va impliquer une augmentation de la température moyenne de la pastille qui va donc se dilater. Les contraintes de traction créées dans la gaine par l'IPG vont fortement s'amplifier et, dans le cas d'une localisation des déformations, peut avoisiner la limite à rupture ; le risque de fissuration du Zircaloy est maximal en fin de rampe.

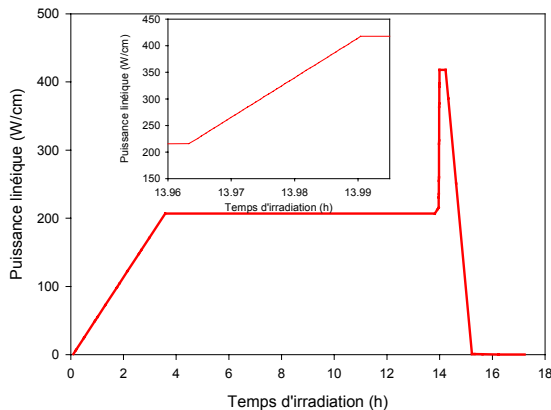


Figure 4.9 - Rampe de puissance précédée d'une courte étape de reconditionnement du crayon.

Ce brusque doublement de puissance va fortement influencer le champ thermique dans la pastille, toujours refroidie en périphérie à travers la gaine par le fluide caloporteur. La pastille subit alors un fort transitoire thermique, les vitesses de montée en température pouvant atteindre 700°C.s^{-1} et les gradients spatiaux environ $600^\circ\text{C.cm}^{-1}$. Le gradient thermique résultant est présenté sur la Figure 4.10.

Les figures présentées dans la suite concernent uniquement la forte montée en puissance du crayon pour les coordonnées temporelles. Par définition, le cœur de la pastille correspond à un rayon nul. Evidemment lorsque $r = 0.4 \text{ mm}$, il s'agit de la zone extérieure de la pastille, la plus froide.

Ainsi sur la peau externe, la température varie peu (de 400 à 450°C), alors que la température centrale passe de 950 à 1 650°C. Les températures élevées vont impliquer un fort relâchement des gaz de fission, qui va faire augmenter la pression interne du crayon.

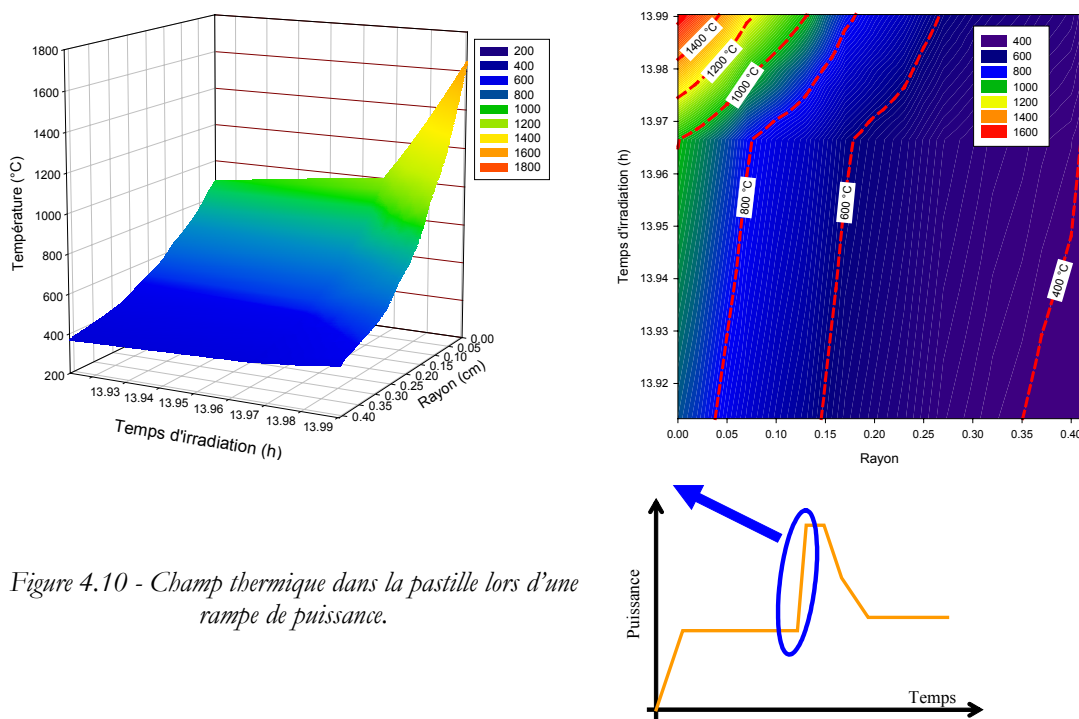


Figure 4.10 - Champ thermique dans la pastille lors d'une rampe de puissance.

4.4 Description d'une rampe de puissance, évolution des contraintes mécaniques

Dans ces conditions de fort gradient thermique, le matériau se situant dans la zone froide périphérique conserve un comportement élastique fragile et reste difficilement déformable. La zone centrale chaude et dilatée "poussera" sur la périphérie et aura plus de facilité à se déformer. Ces gradients de déformations à l'intérieur même du combustible vont engendrer des contraintes internes. Les codes CYRANO3 ou METEOR permettent de simuler l'évolution de ces sollicitations : elles sont représentées sur la Figure 4.11 et la Figure 4.12.

Le cœur de la pastille a tendance à se dilater plus que la partie extérieure. La céramique se trouve donc principalement en compression radiale, cette force est évidemment plus importante en se rapprochant du centre et en fin de rampe. La composante tangentielle est plus complexe. A cœur, le matériau est également en compression, avec des valeurs assez similaires. Par contre le combustible se trouve en forte traction tangentielle à l'extérieur, d'une valeur quasiment opposée à celle du centre.

L'état de sollicitations de l'oxyde d'uranium lors d'une rampe de puissance est donc assez complexe. En effet, à cœur, le matériau se trouve plutôt en compression multiaxiale, se rapprochant même d'un état de compression hydrostatique. Lorsqu'on se déplace du centre vers la périphérie, l'état de contraintes évolue jusqu'à ce que, à l'extérieur, la pastille se trouve principalement en traction tangentielle uniaxiale. Le gradient thermique induit donc un champ de contraintes complexe dans le matériau, mais il engendre également un gradient de comportement du matériau, comme l'illustre la Figure 4.13 ; passant d'un état élastique, fragile et peu déformable en périphérie ; à un état viscoplastique beaucoup plus malléable à cœur.

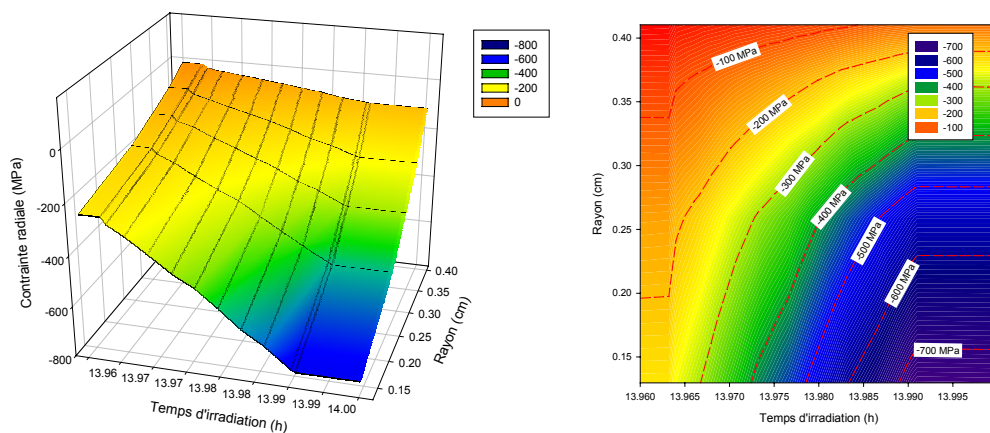


Figure 4.11- Contrainte radiale dans la pastille au cours d'une rampe de puissance.

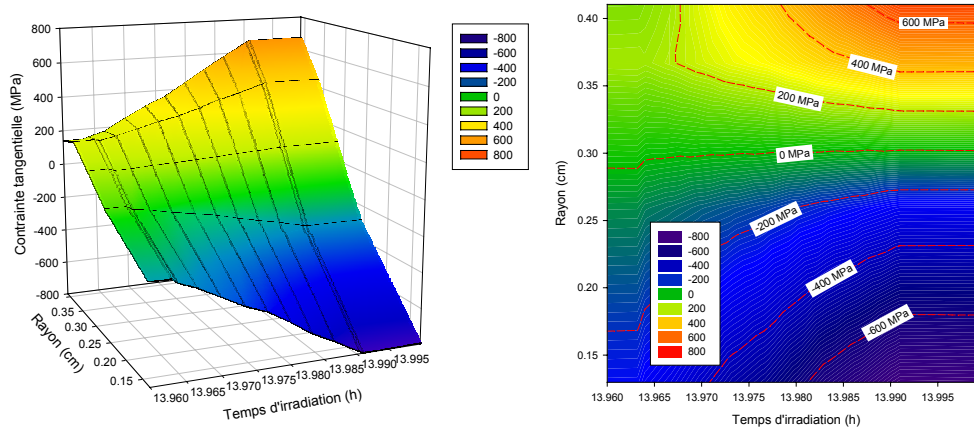
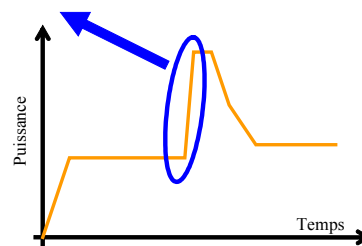


Figure 4.12- Contrainte tangentielle dans la pastille au cours d'une rampe de puissance.

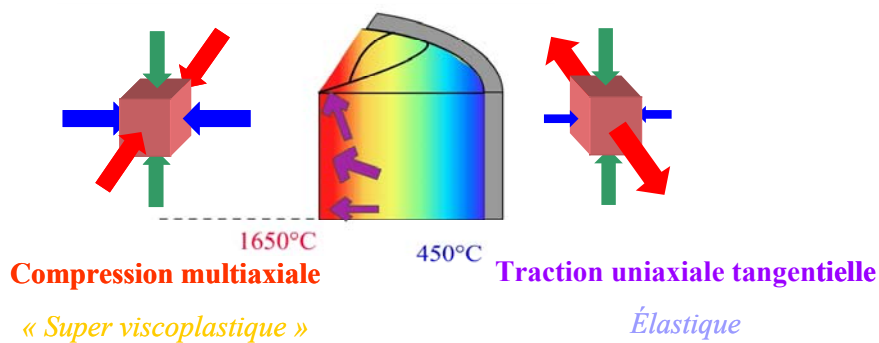


Figure 4.13 - Représentation schématique des types de contraintes et du comportement du combustible en fin de rampe.

Cette situation peut s'assimiler à un frettage du combustible intérieur chaud viscoplastique par un cylindre élastique. Ne pouvant donc s'évacuer radialement, l'écoulement du combustible viscoplastique central se fera axialement. Les retours d'expériences confirment cette vision schématique des choses. Des pastilles irradiées présentent effectivement une microfissuration à la périphérie, dans la zone froide sous tension. De plus, on constate en pratique un comblement, partiel ou total, des évidements centraux inter-pastilles par déformation plastique.

Si les effets d'une rampe de puissance sur le combustible peuvent être spectaculaires, il est important de noter que les déformations mises en jeu sont faibles et restent en tous cas inférieures à 0,5%. Les vitesses de déformation maximales sont de l'ordre de $5 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$. Ces valeurs sont similaires aux calculs effectués par (Diard 2001) ou par (Sauter 2001), à travers de modélisations 3D du comportement du combustible, avec une loi de type Lemaitre (Lemaitre 1988) pour le combustible. Un exemple de ces résultats est présenté sur la Figure 4.14.

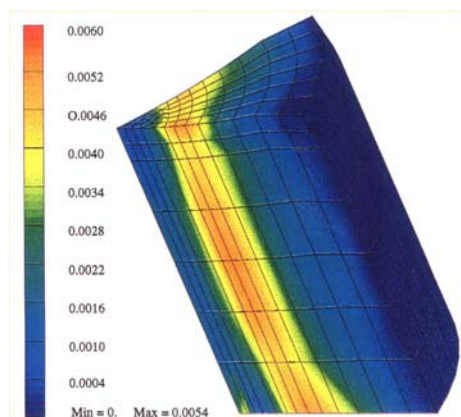


Figure 4.14 - Exemple de modélisation 3D du crayon lors d'une rampe de puissance.

Déformations viscoplastiques cumulées

(Diard 2001)

Solomon signale que ces faibles taux correspondent aux premiers stades du fluage du dioxyde d'uranium (Solomon 1982). L'étude bibliographique réalisée dans le chapitre précédent confirme d'ailleurs que ces taux de déformation se situeraient largement dans le stade primaire (transitoire) du fluage d' UO_2 . Par exemple, la Figure 4.15 montre qu'il faut atteindre 15 % de déformation à $1\,500^\circ\text{C}$ sous 70 MPa pour entrer dans un régime stationnaire de fluage. Il s'agit de courbes de fluage réalisé en compression sur des pastilles issues d'un lot B, à $1\,500^\circ\text{C}$ et sous différentes contraintes. Ces essais seront plus longuement exposés dans la suite de ce manuscrit, notamment au chapitre VII.

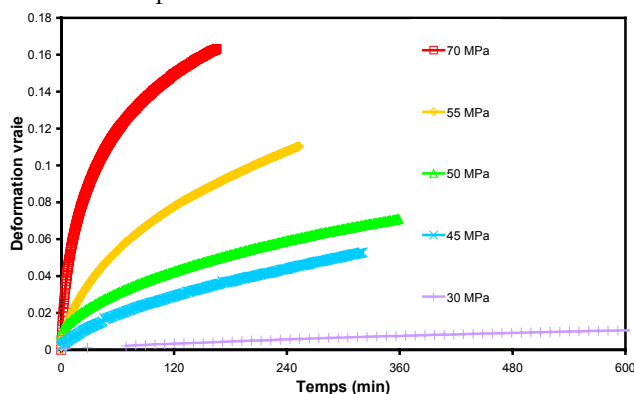


Figure 4.15 - Essais de fluage sur un lot B en compression à $1\,500^\circ\text{C}$

Notons pour terminer que des déformations aussi faibles que celles associées aux transitoires de puissance sont délicates à mesurer par des essais de compression : par exemple, une déformation de 0,5% appliquée à une pastille de 12 mm de haut se traduit par un déplacement de 60 μm .

4.5 Conclusion

Pour évaluer le comportement des crayons en réacteur, EDF et CEA ont développé des codes de calcul spécifiques, CYRANO3 ou METEOR. Ils nous ont permis de mettre en évidence un état de contrainte assez complexe dans la pastille lors des rampes de puissance, passant, du centre vers la périphérie, d'une compression quasi hydrostatique à une traction uniaxiale tangentielle. Les déformations à cœur et les vitesses de déformation résultantes restent assez faibles, respectivement des valeurs absolues maximales de 0,5 % et de $5 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$.

La simulation des transitoires de puissance nécessite donc l'identification de lois de comportement adaptées aux faibles taux de déformation, en particulier capables de prendre en compte le fluage primaire.

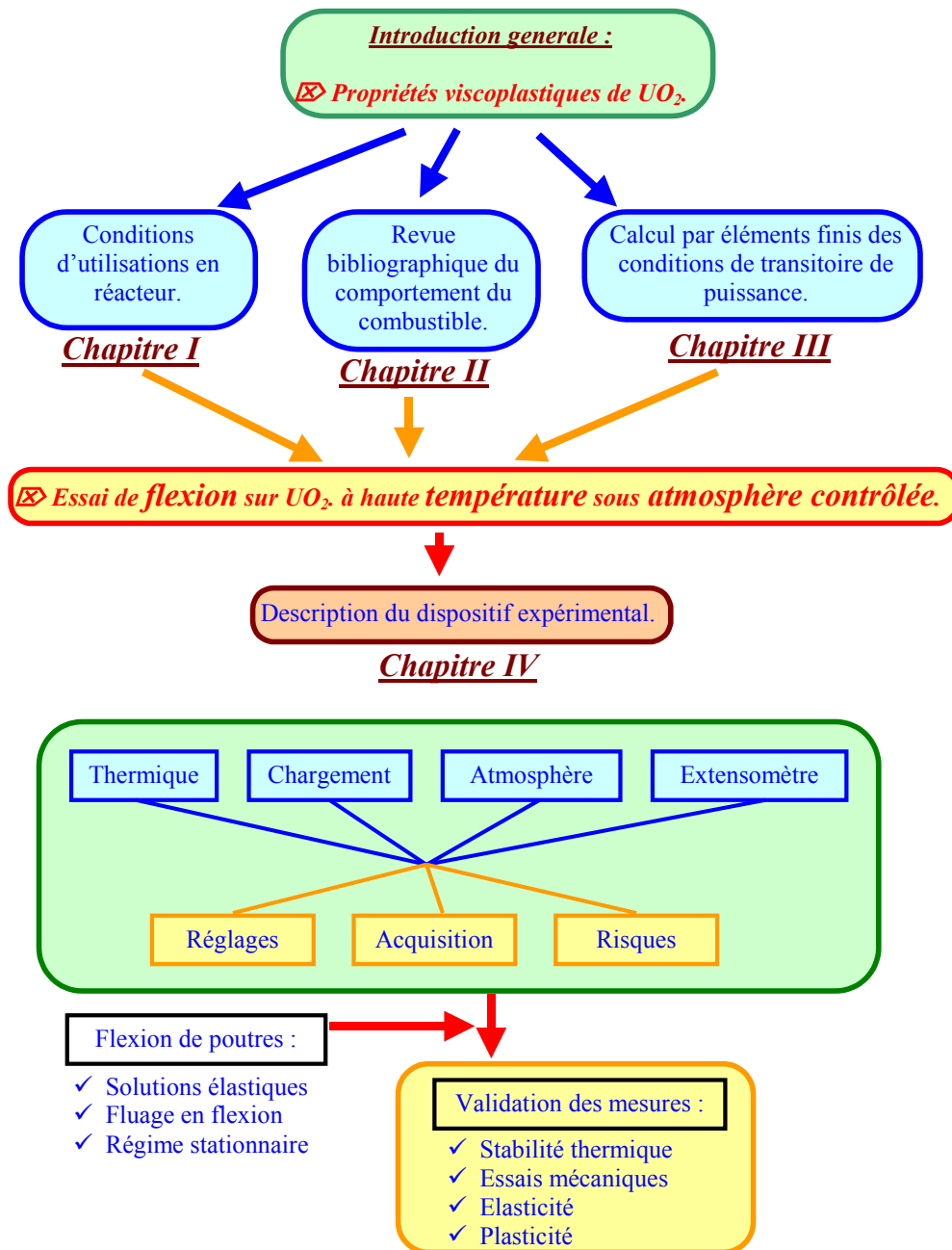
Nous verrons dans le chapitre suivant que le souci de rester dans des conditions de sollicitation réalistes par rapport aux sollicitations en réacteur nous a orienté vers le choix de l'essai de flexion.

*« Ils ne savaient pas que c'était impossible... Alors ils l'ont fait.
..... euh ou quelque chose comme ça »
Mathieu Jacquot, lors d'une très (trop ?) longue soirée de Novembre 2000.*

*« ... aie, aie... bou la la, c'est chaud... »
H. Tazieff, étourdi, un jour sans, où il avait sans doute oublié ses gants.*

5 Dispositif expérimental





5 DISPOSITIF EXPERIMENTAL

- 5.1 ELEMENT CHAUFFANT : FOUR GRAPHITE A INDUCTION
- 5.2 MESURE DE LA CHARGE ET ENSEMBLE DE CHARGEMENT
- 5.3 ATMOSPHERE CONTROLEE : L'ENCEINTE D'ESSAI
- 5.4 MESURE DES DEFORMATIONS : EXTENSOMETRE LASER
 - 5.4.1 Principe
 - 5.4.2 Limites d'utilisation de l'extensomètre et solutions proposées
- 5.5 REGLAGE ET MISE EN PLACE DU DISPOSITIF
- 5.6 MESURES DES DIFFERENTS SIGNAUX UTILES :
CHAINES D'ACQUISITION
- 5.7 RISQUES D'UTILISATION DE L'APPAREIL
- 5.8 DESCRIPTION MECANIQUE DE L'ESSAI DE FLEXION
 - 5.8.1 Solution élastique
 - 5.8.2 Fluage en flexion
 - 5.8.3 Régime stationnaire
- 5.9 VALIDATIONS DES MESURES
 - 5.9.1 Stabilité thermique
 - 5.9.2 Essais mécaniques
 - 5.9.3 Mesures de modules d'élasticité
 - 5.9.4 Mesures de déformations permanentes plastiques
- 5.10 CONCLUSION

Notre étude s'est intéressée au comportement à chaud de la céramique nucléaire. Le dispositif expérimental nécessaire à la réalisation de nos essais a spécialement été conçu et réalisé au laboratoire, en tenant compte du savoir-faire acquis dans le groupe, notamment aux travers de quelques thèses récentes (Fritz-Chateau 1999, Lemarchand 2003). Ce chapitre a pour but d'exposer les principes que nous avons exploités et les choix technologiques que nous avons réalisés pour construire cette machine. La Figure 5.1 représente une vue globale du dispositif.

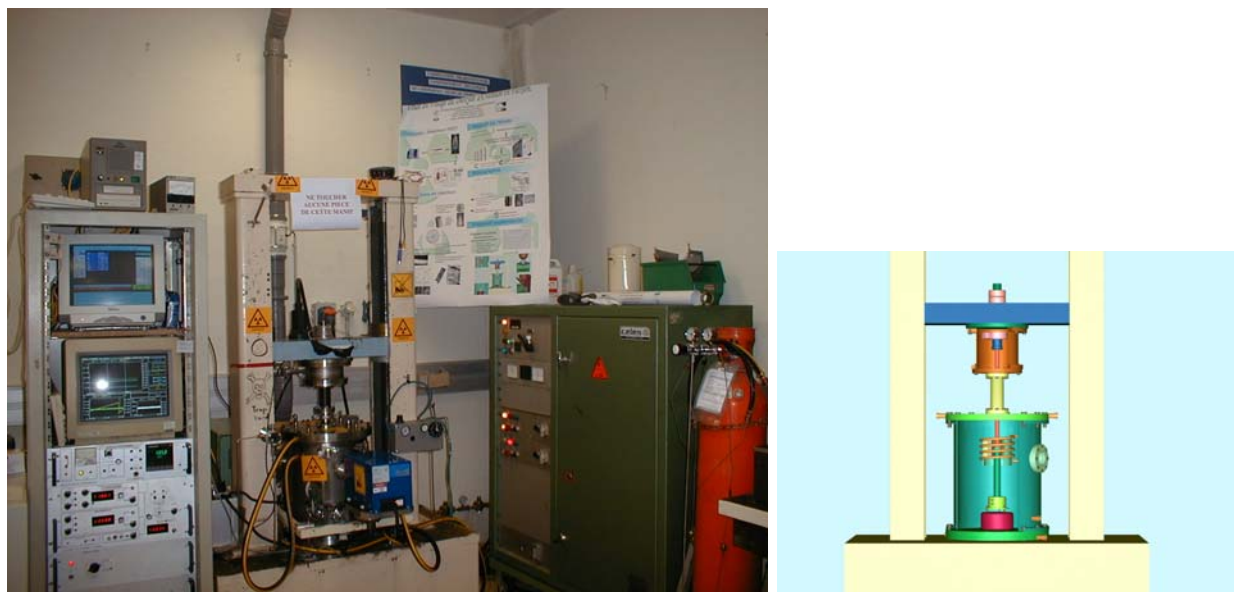


Figure 5.1 - Vue générale et schématisation du dispositif de flexion à haute température sous atmosphère contrôlée.

Tel que nous l'avons réalisé, notre dispositif expérimental permet d'effectuer des essais de flexion jusqu'à 1 500°C. Les essais ont eu lieu sous atmosphère contrôlée réductrice ($\text{Ar} + 5\% \text{H}_2$) pour fixer la stoechiométrie du dioxyde d'uranium. Cet aspect a déjà été traité précédemment. Pour rappel, cette atmosphère est identique à celle utilisée lors du frittage des pastilles et lors des essais de compression réalisés aux CEA.

La nécessité de travailler sur des éprouvettes découpées dans des pastilles réelles nous impose le très faible entraxe de 10 mm. Cette contrainte a fortement orienté nos choix de conception et de technologies utilisées. Ainsi, il faut être avant tout capable de mesurer des faibles charges et des faibles déplacements. La mesure de la flèche a notamment nécessité l'utilisation d'un extensomètre Laser. La machine finale est schématisée par la Figure 5.3. La conception de ce dispositif est orientée par un souci de modularité. Le système final autorise certaines évolutions, permettant donc de l'utiliser pour d'autres études (compression,...), ainsi que sur d'autres matériaux ou géométries d'éprouvettes.

Dans notre description de ce moyen d'essai, après le four, nous nous intéresserons successivement au dispositif de chargement, à l'enceinte permettant de contrôler l'atmosphère, au système d'extensométrie par laser et enfin à la chaîne d'acquisition de mesure. Les essais préliminaires de validation seront finalement exposés, après un court descriptif des risques de l'installation.

5.1 Élément chauffant : four graphite à induction

Notre choix technologique s'est orienté vers un four en graphite chauffé par induction, car il permet d'atteindre aisément les températures visées pour notre étude, l'atmosphère d'argon hydrogéné empêchant l'oxydation du graphite. Le chauffage par induction permet de concentrer sur des volumes réduits des puissances importantes. L'énergie électrique est fournie par un générateur haute fréquence apériodique de 15 kW CELES. Pour les tests sur les céramiques, généralement peu conductrices de l'électricité, il est nécessaire d'utiliser une méthode d'induction indirecte : un suscepteur (S) en graphite est intercalé, comme schématisé sur la Figure 5.2, entre l'éprouvette (E) et l'inducteur (I). Une puissance minimale nécessaire au couplage électromagnétique rend impossible une régulation précise en température en dessous de 800°C.

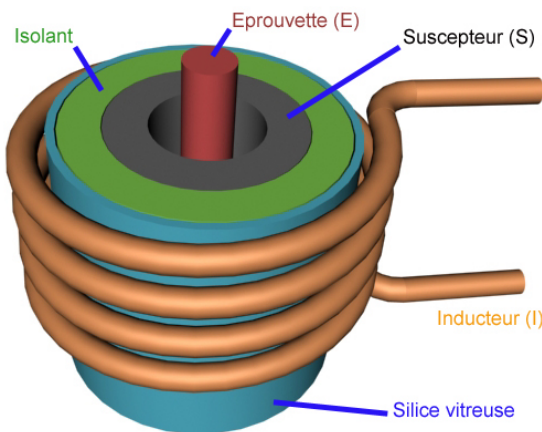


Figure 5.2 - Schéma du four chauffé par induction indirecte.

L'inducteur a été dimensionné, en particulier le nombre de spires, en fonction du générateur, de la tête d'induction et de la charge (suscepteur), pour caler la fréquence de résonance dans la plage de fonctionnement optimal du générateur apériodique (100 - 400 kHz). Une plaque d'alumine étanche, adaptée sur l'enceinte, supporte les connexions électriques haute tension nécessaires à l'alimentation de l'inducteur.

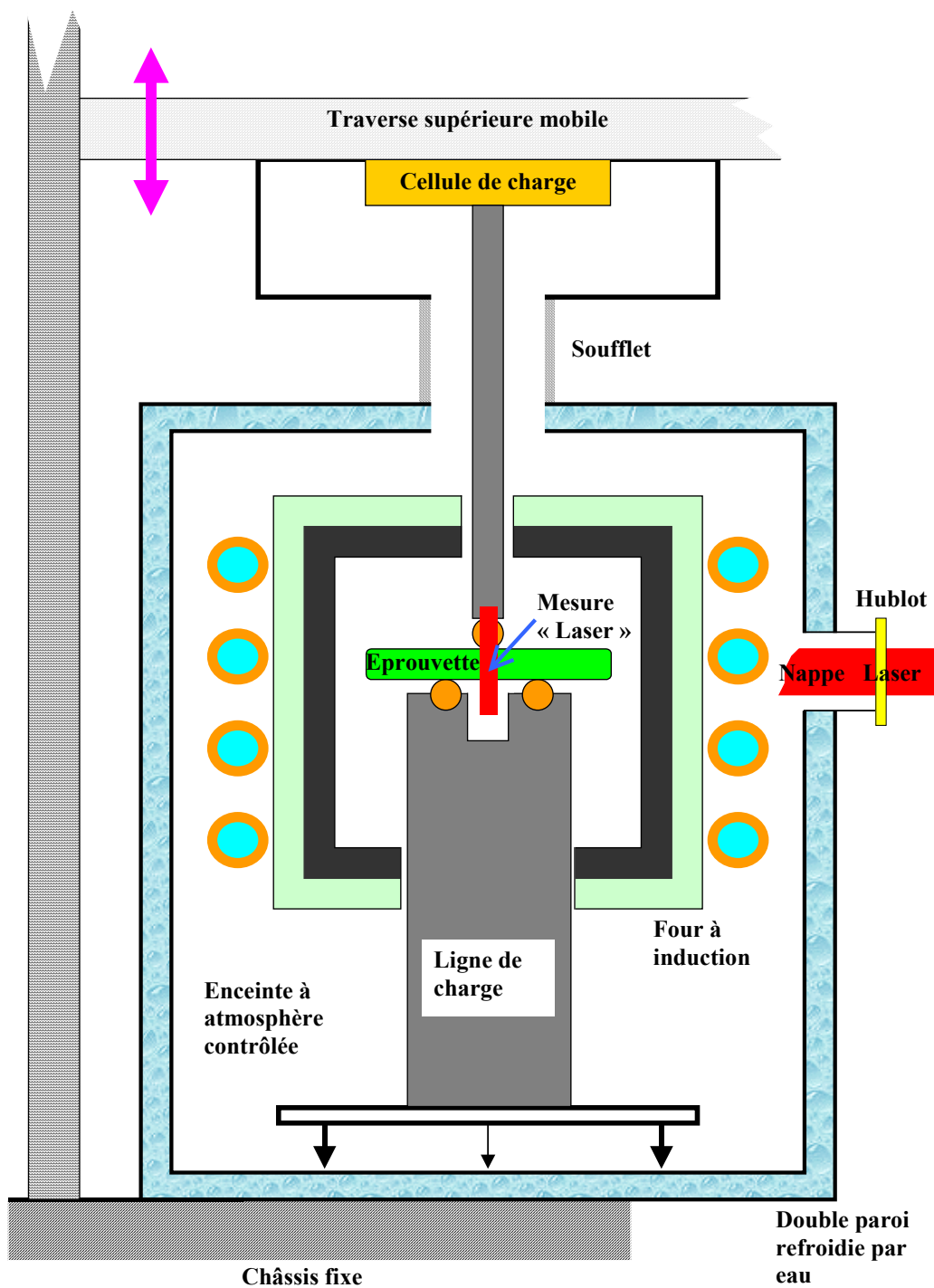


Figure 5.3 - Schéma général du dispositif d'essai à haute température.

Le dimensionnement du four a été réalisé à partir d'une étude précédente (Fritz 1995) : le susceptible graphite cylindrique a une épaisseur de 15 mm, un diamètre extérieur et une hauteur de 70 mm. Une couche d'isolant en feutre de graphite d'une épaisseur de 40 mm permet de limiter les pertes thermiques. L'assemblage des différents constituants du four est schématisé sur la Figure 5.4. Des alésages permettent le passage des lignes de charges et du faisceau laser de l'extensomètre.

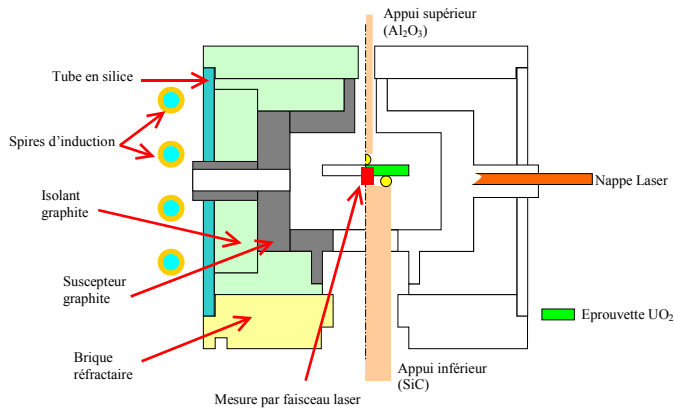


Figure 5.4 - Coupe schématique du four à induction.

La nature des matériaux utilisés et les dimensions des composants "chauds" du dispositif autorisent des vitesses de chauffe et de refroidissement élevées (environ 1 500°C/h). De même, l'équilibre thermique nécessaire avant de démarrer un essai est très vite atteint. Des mesures thermiques dans l'enceinte, (Gaillieue 1999), ont permis d'estimer la température d'ambiance à environ 10% de la température du four. Les alésages nécessaires au passage du faisceau laser, n'ont que peu d'influence sur l'équilibre thermique du four. En effet, les tubes de graphite que traverse le faisceau laser sont, comme le susceptible, soumis au champ électromagnétique, et la chaleur qui y est dégagée compense les pertes thermiques vers l'enceinte. Par contre, ces ouvertures constituent des points chauds dans l'atmosphère de l'enceinte, qui sont à l'origine de mouvements de convection de l'argon dans une zone proche du four traversée par le rayon laser.

Compte tenu des faibles dimensions de l'éprouvette, sa température peut aisément être considérée comme homogène ; un thermocouple de contrôle est placé au plus près de celle-ci. Ce thermocouple de type C (WRe5% / WRe26%), préférable aux thermocouples en platine en ambiance réductrice, permet de mesurer la température du four au-delà de 1 800°C. La température est contrôlée par une régulation de marque Eurotherm.

5.2 Mesure de la charge et ensemble de chargement

Le cahier des charges de cette étude impose de prélever les échantillons directement dans les pastilles, ceci dans un souci de représentativité des essais. Rappelons que ces dernières sont de faibles dimensions (cylindres de 13 mm de hauteur et 8 mm de diamètre). De nombreux résultats de compression étant d'ores et déjà disponibles dans la littérature (cf. Chapitre 2) et la traction s'annonçant particulièrement difficile à mettre en oeuvre, le mode de sollicitation choisi pour nos essais a été la flexion trois points.

Cette méthode est plus simple à mettre en œuvre que :

- ✓ les essais de traction, que l'amarrage et l'alignement rendent particulièrement difficiles, surtout sur des éprouvettes céramiques fragiles d'aussi petite taille ;
- ✓ la compression, qui, comme nous l'avons vu précédemment, permet difficilement d'accéder aux faibles niveaux de déformation enregistrés en réacteur.

La flexion engendre une flèche importante pour des faibles taux de déformations du matériau, ce qui facilite la mesure des faibles déplacements à investiguer dans notre étude.

Une géométrie de 10 mm d'entraxe a été retenue pour cette étude. Les éprouvettes, schématisées sur la Figure 5.5, de largeurs variables et d'épaisseur 0,5 ou 1 mm, ont été découpées grâce à une scie à fil (cf. Chapitre suivant).

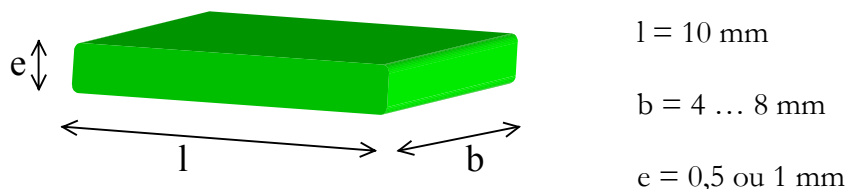


Figure 5.5 - Géométrie des éprouvettes retenue pour cette étude.

Les matériaux utilisés pour réaliser la ligne de charge doivent permettre la transmission des efforts à haute température. Ils doivent également être chimiquement stables dans l'atmosphère du four. Une présélection a conduit à retenir de l'alumine et du carbure de silicium : c'est la présence d'alumine qui limite la température d'utilisation à 1 500°C.

Le matériau constituant les rouleaux, directement en contact avec l'échantillon, ne doit bien sûr pas interagir avec ce dernier. Ce risque augmente avec la température. De ce point de vue, l'alumine semble un bon choix. D'après le diagramme de phases représenté sur la Figure 5.6, aucune réaction n'est possible entre les deux céramiques en dessous de 1 900°C, température très supérieure à celle de nos essais.

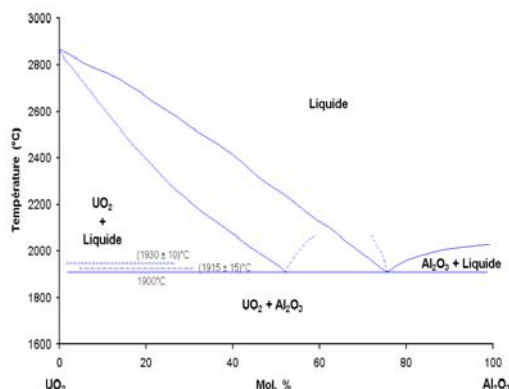


Figure 5.6 - Système Al_2O_3 - UO_2 .

(Lang 1956)

La ligne inférieure, usinée dans une pièce massive en carbure de silicium densifié par frittage naturel, est présentée sur la Figure 5.7. Elle dispose de deux rainures de positionnement des rouleaux d'appui avec un entraxe de 10 mm, et d'un évidement central permettant le passage de la nappe laser de l'extensomètre (cf. § 5.4). Cette ligne est fixée sur un tripode, permettant le positionnement en rotation et en horizontalité des appuis inférieurs. Entre le tripode et la ligne, des pions de zirconne constituent une barrière thermique limitant les déperditions thermiques.



Figure 5.7 - Ligne inférieure en SiC, pions de zirconne et tripode.

La ligne supérieure est un simple barreau d'alumine haute pureté (99,7%) de 10 mm de diamètre pour une longueur de 30 cm. Les efforts sont mesurés en haut de cette ligne à l'aide d'une cellule de charge d'une capacité de 50 N, nécessaire pour mesurer avec une précision suffisante les faibles charges mises en jeu lors de nos essais. Il est à noter que la mesure précise de faibles charges exige de limiter au plus les frottements et efforts parasites sur la ligne de chargement associée à la cellule. Pour cette raison, le capteur est placé à l'intérieur de l'enceinte pour ne pas intégrer les erreurs de mesure associées à un passage étanche (joint glissant, soufflet d'étanchéité,...). L'ensemble est disposé sur un bâti de machine d'essai TINUS d'une capacité de 10 tonnes.

L'alignement des trois points d'appui est réalisé à l'aide d'une cloche en graphite, qui vient se poser en référence sur la ligne inférieure. La rainure qui y est usinée permet le positionnement correct du point supérieur. La Figure 5.8 schématise ce dispositif.

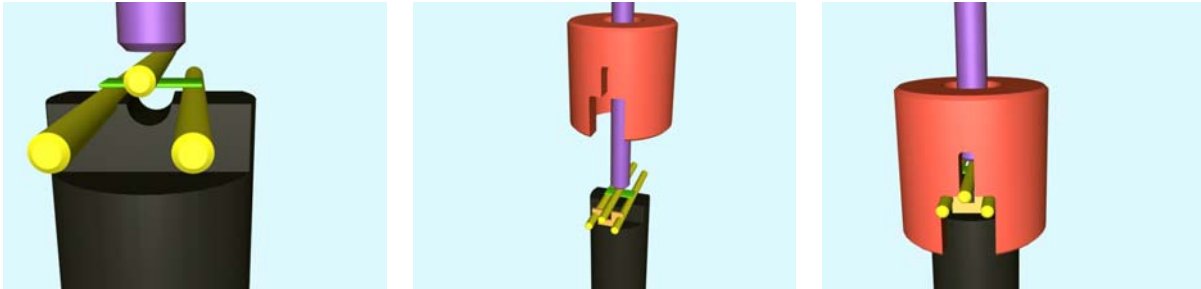


Figure 5.8 - Méthode de centrage des points d'appui.

Le barreau supérieur en alumine vient alors en contact simple sur une génératrice du rouleau d'appui. Cette astuce permet de combiner un positionnement correct et répétitif des points d'appui et d'assurer leur parallélisme.

5.3 Atmosphère contrôlée : l'enceinte d'essai

Comme cela a été exposé précédemment dans la partie bibliographique, il est nécessaire de réaliser les essais sous atmosphère d'argon additionné de 5 % d'hydrogène, afin de se placer dans des conditions comparables à celles utilisées aux CEA.

En partant de l'expérience du laboratoire, nous avons choisi de réaliser une enceinte à double paroi refroidie par eau (Figure 5.9). Le dimensionnement est calculé en tenant compte de la place disponible entre les colonnes de la machine d'essai et des joints d'étanchéité disponibles, l'enceinte devant être suffisamment grande pour être assez éloignée de la bobine et éviter son couplage inductif. La translation nécessaire au chargement de l'éprouvette est autorisée par un soufflet étanche. Le corps principal de l'enceinte constitue une cage de Faraday confinant les ondes électromagnétiques, ce qui évite le parasitage des dispositifs de mesure périphériques par la haute fréquence de l'induction. La cellule de charge est fixée en partie supérieure, sur la traverse mobile, à l'intérieur de l'enceinte d'essai, un cylindre métallique la protégeant de la chaleur et des champs électromagnétiques associés à l'induction. Une circulation d'eau permet de refroidir l'ensemble, notamment au niveau des joints d'étanchéité, et de maintenir froides les parois extérieures de la chambre. Deux réducteurs de pression, installés entre le circuit d'eau industrielle et la chambre à vide, permettent de limiter les variations de pressions, internes aux doubles parois, néfastes aux mesures. Deux hublots sont disposés de part et d'autre de l'enceinte pour permettre le passage de la nappe laser de l'extensomètre. Une pompe à palettes permet d'obtenir un vide primaire de l'ordre de $2 \cdot 10^{-1}$ mbar. Un circuit d'alimentation en gaz, schématisé sur la Figure 5.10, fait circuler l'argon hydrogéné nécessaire aux essais. Des dispositifs de sécurité (soupape et vis fusibles mécaniques) préviennent toute explosion incontrôlée de l'enceinte par surpression interne.

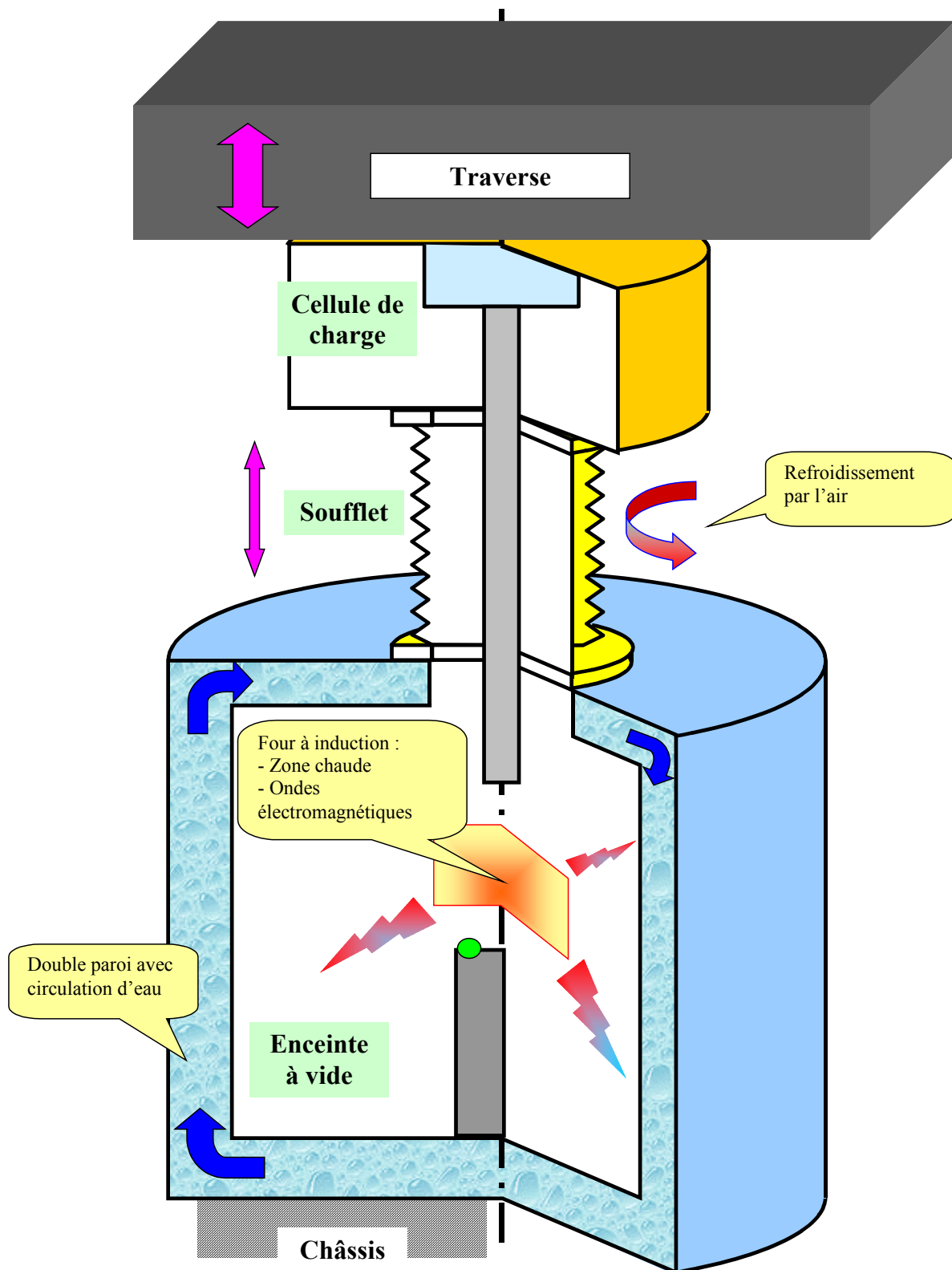


Figure 5.9 - Vue en coupe de l'enceinte d'essai.

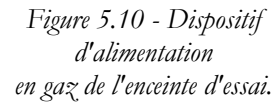






Figure 5.12 – Extensomètre laser
(modèle LSM 3100 Mitutoyo).

La nature même d'un rayon laser (lumière cohérente) permet d'obtenir des faisceaux de très petite taille et ne diffusant pas. La Figure 5.11 expose le principe d'un micromètre à balayage laser en transmission.

Une diode laser émet un rayon ponctuel qui, après réflexion sur un premier miroir, est dirigé vers un miroir polygonal tournant à grande vitesse. L'ensemble des rayons réfléchis traverse un collimateur, ce qui permet d'obtenir des rayons parallèles. Il sort finalement une nappe laser en direction de l'échantillon à mesurer, représentée sur la Figure 5.12.

La distance à évaluer se traduit par le déplacement d'une interface ombre-lumière qui est mesuré par une cellule photoélectrique située en regard de l'émetteur laser.

5.4.2 Limites d'utilisation de l'extensomètre et solutions proposées

En raison de l'utilisation d'un faisceau laser, la précision de la mesure dépend surtout de la qualité du trajet optique du système.

Tout d'abord, il faut rappeler que, pour obtenir des faisceaux parallèles en sortie du collimateur, il faut se placer au plus près des conditions de Gauss, soit proche de l'axe optique. Pour obtenir une meilleure précision, la mesure doit être faite au centre de la nappe laser. Un autre facteur est l'intervalle entre l'émetteur et le récepteur et leurs distances par rapport à l'échantillon à mesurer. Le laser est focalisé à une distance calculée en fonction de l'ensemble du dispositif. En s'éloignant de ce point focal, le faisceau s'élargit, augmentant par là même les incertitudes de mesures.

Les hublots, permettant le passage des rayons du Laser à travers l'enceinte sont en verre borosilicaté de qualité optique afin de limiter les atténuations et les diffractions de faisceau associées à chaque traversée d'interface.

La cellule photoélectrique est sensible à un large spectre en longueur d'onde de la lumière. A haute température, le four rayonne de manière significative dans des longueurs d'onde proches de celle du laser. La diode réceptrice du micromètre laser détecte alors, outre le faisceau laser, le bruit optique créé par le rayonnement du four. Plus la température du four est élevée, plus le bruit de fond devient significatif jusqu'au moment où le capteur ne peut plus isoler le signal du laser, et la mesure devient alors impossible. Par exemple, sans précaution expérimentale particulière, et dans notre configuration, l'extensomètre Mitutoyo LSM-3100 ne peut effectuer de mesure correcte au-delà de 1 250°C. Il faut donc utiliser des filtres optiques, pour réaliser un filtre passe-bande actif de part et d'autre de la longueur d'onde du laser.

Notre choix s'est porté alors sur un extensomètre laser Fiedler OptoElektronik GmbH, modèle P-50, particulièrement adapté aux mesures à haute température (Luecke 1996, Rendtel 2001). Il est équipé de filtres optiques permettant des mesures jusqu'à 1 800°C. Comme l'a noté un auteur, (Carroll 1989), la variation de densité des gaz sur le passage du faisceau constitue une limite des technologies optiques appliquées à haute température. Les gradients thermiques dans l'enceinte sont à l'origine de mouvements de convection, notamment près des alésages ménagés dans le four pour permettre le passage du faisceau. Ces mouvements perturbent le passage rectiligne du laser, ce qui se traduit par une nette augmentation du bruit. Fiedler OptoElektronik a adapté des filtres passe-bas, analogiques et numériques supplémentaires, spécifiques à notre installation, sur le signal en sortie de

la photodiode. La résolution obtenue est ainsi de $\pm 0,3 \mu\text{m}$ à froid et surtout $\pm 2 \mu\text{m}$ en température jusqu'à $1\,500^\circ\text{C}$. Cette résolution est du même ordre de grandeur que celle relevée par un auteur (Ohji 1992) sous air à $1\,400^\circ\text{C}$. Pour améliorer encore la précision, la diode laser est un semi-conducteur de classe IIIb : cette puissance plus élevée que celle de la plupart des extensomètres laser traditionnels améliore le rapport signal utile sur bruit. La détection des interfaces entre zones d'ombre et de lumière est réalisée par l'intermédiaire de la dérivée seconde du signal analogique : cette manière de procéder stabilise et améliore les mesures sur un signal détérioré.

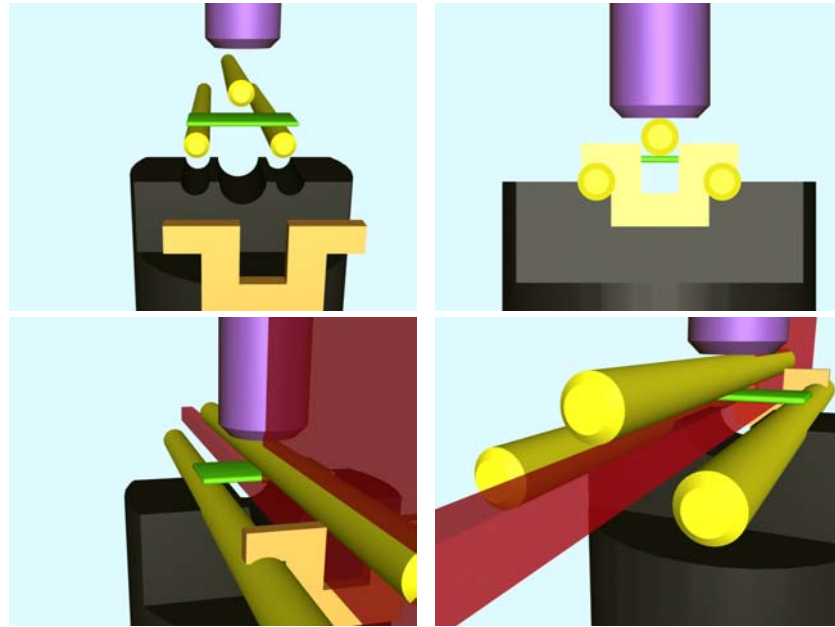


Figure 5.13 - Principe de mesure de la flèche.

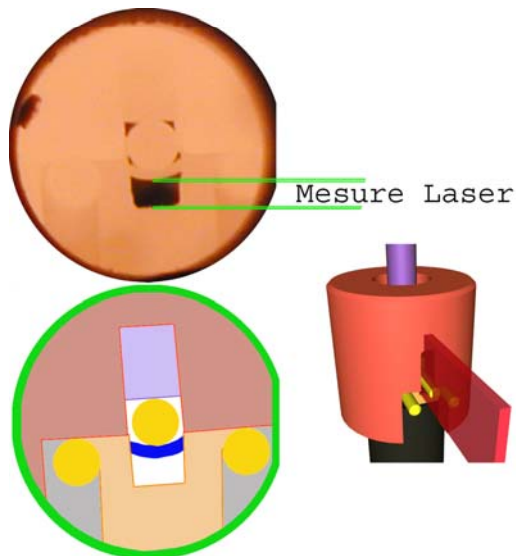


Figure 5.14 – Dispositif de sollicitation : représentation schématique et photographie.

La mesure de la flèche de l'éprouvette est réalisée entre la face inférieure de celle-ci et un cavalier en graphite, en forme de U, solidaire des rouleaux d'appui inférieurs. Le dispositif est schématisé sur la Figure 5.13. La Figure 5.14 représente une photographie in situ d'une éprouvette fléchie à 1350°C .

5.5 Réglage et mise en place du dispositif

L'installation de l'extensomètre laser sur le dispositif expérimental demande de nombreuses précautions. L'extensomètre laser est un appareil particulièrement sensible, et il est donc solidement fixé sur un massif et sert de référence au positionnement des autres éléments du montage, notamment le dispositif de chargement.

Le plan de la nappe laser est ajusté parfaitement vertical. Dans un premier temps, il faut assurer l'horizontalité du plan d'appui pour garantir sa perpendicularité par rapport à la nappe laser. Pour cela on émet l'hypothèse que le plan d'appui est parallèle aux grandes faces de l'éprouvette ; il faut alors vérifier l'horizontalité des arêtes de ces grandes faces (deux degrés de liberté), comme schématisé sur la Figure 5.15 dans les rotations (1) et (2). Cette étape est illustrée sur la Figure 5.16, partie (a), où le faisceau laser est représenté en rouge.

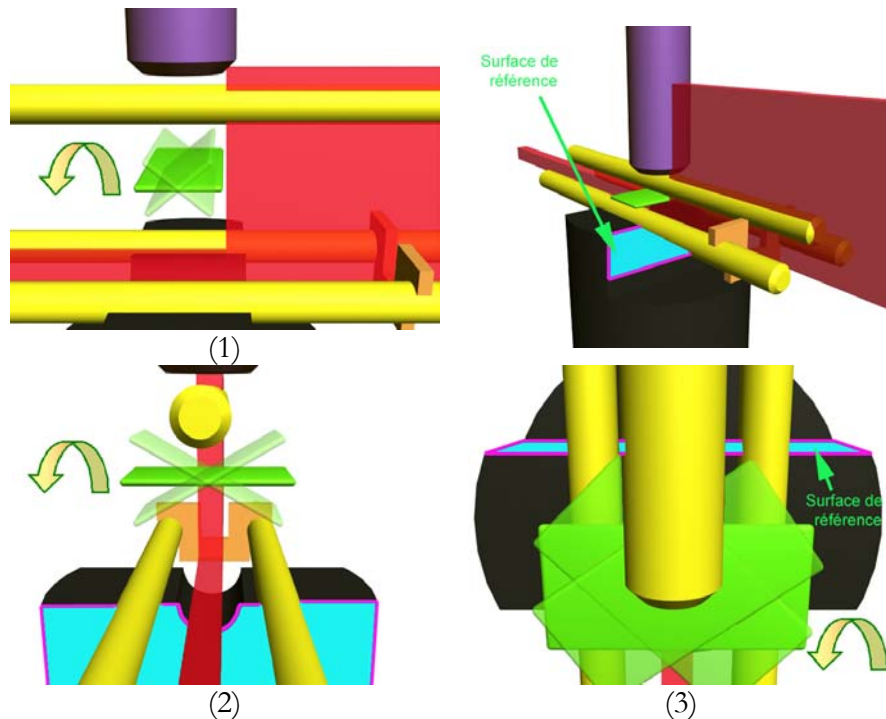


Figure 5.15 - Degrés de liberté possibles pour le système de charge

La conception de la ligne inférieure permet ces réglages grâce à un tripode qui permet également la libre rotation de l'ensemble autour de son axe. Il faut alors vérifier la perpendicularité du faisceau par rapport à l'axe long de l'éprouvette.

Pour cela, comme indiqué sur la partie (b) de la Figure 5.16, on utilise un barreau métallique pour représenter le laser. Lors de la conception de la ligne de charge inférieure (Figure 5.7), un méplat est nécessaire pour autoriser les divers usinages ; il sert de surface de référence, plus visible sur la Figure 5.15, et le plan qu'il définit doit être perpendiculaire au plan de la nappe laser, suivant la rotation (3) sur la Figure 5.15. Cette condition revient, en utilisant le barreau métallique, à mettre ce méplat parallèle à l'extrémité de la tige métallique. Ceci est vérifié sur la partie (b) de la Figure 5.16, dans les divers encadrés. Enfin, il y a un blocage minimum de cette position afin de la maintenir en température.

Le système de cloche, qui vient se mettre en référence sur les appuis inférieurs, garantit au mieux le positionnement des trois rouleaux d'appui. La partie supérieure de la ligne de charge fonctionne comme un simple piston, il existe suffisamment de jeu dans sa fixation pour l'aligner avec la partie inférieure.

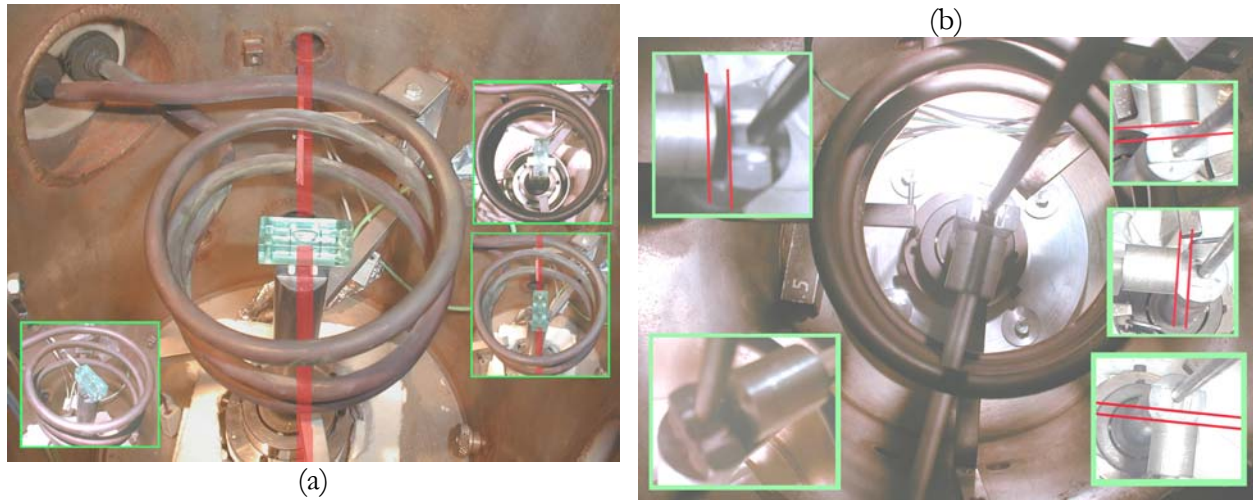


Figure 5.16 - Positionnement du système de charge.

5.6 Mesures des différents signaux utiles : chaînes d'acquisition

L'ensemble des signaux (température, puissance du four, charge, flèche) est collecté par le logiciel ATS (analyse et traitement du signal) avec une carte d'acquisition 0-10 V, 10 bits. Les précisions des mesures sont :

- ✓ de 15°C pour les mesures de températures absolues, avec des fluctuations par rapport à la consigne inférieure à 2 degrés ;
- ✓ 0,05 N pour la mesure de charge;
- ✓ de $\pm 2 \mu\text{m}$ pour la mesure de flèche à chaud.

Les signaux recueillis subissent un traitement numérique par un filtre passe-bas à 0,001 Hz. Cette fréquence de coupure faible est adaptée à la caractérisation du fluage, qui est un phénomène lent. Lors des séquences de chargement ou de déchargement, nous utilisons un filtre à 0,1Hz. Ce filtrage moins sévère explique le bruit plus important lors des variations de charge.

5.7 Risques d'utilisation de l'appareil

Du fait de sa conception générale, le dispositif d'essai présente quelques risques. Hormis les dangers évidents dus à l'usage d'un laser, de hautes tensions électriques et d'induction électromagnétique haute fréquence, une surpression dans l'enceinte doit être envisagée, soit par réaction chimique dégageant un gaz, soit par évaporation, par exemple dans le cas d'une fuite d'eau au niveau de l'inducteur. Aussi un circuit d'échappement est installé sur la chambre pour permettre un balayage gazeux. L'enceinte est par ailleurs équipée d'une soupape de sécurité anti-surpression tarée à 2,3 bars et de vis fusibles mécaniques (réglées à 3 bars) capables de libérer le hublot (Gaillieue 1999).

Quelques systèmes de sécurité spécifiques ont également été ajoutés sur le dispositif. Par exemple le régulateur de température Eurotherm coupe l'alimentation du four en cas de rupture du thermocouple. De même, un capteur vérifie en continu le débit d'eau de refroidissement et coupe l'alimentation électrique en cas de défaut. Le chemin optique du laser est protégé, afin de prévenir tout accident et toute interruption de mesure par rupture du faisceau.

5.8 Description mécanique de l'essai de flexion

5.8.1 Solution élastique

L'essai de flexion, s'il est de mise en œuvre relativement aisée à haute température, ne génère pas un champ de contraintes uniforme dans l'éprouvette. Il est donc nécessaire de calculer les composantes élémentaires de sollicitation (contraintes et déformations) à partir des grandeurs macroscopiques mesurées au cours de l'essai (charge et flèche). Pour un comportement élastique linéaire, la flèche f maximale prise sous un chargement P est fonction du module d'élasticité E et de la géométrie de l'éprouvette :

$$f = \frac{l^3}{4be^3} \frac{1}{E} P$$

où b et e sont respectivement la largeur et l'épaisseur de l'éprouvette et l l'entraxe de sollicitation. La mécanique des milieux continus donne des solutions analytiques pour l'essai de flexion trois points en élasticité. Dans la configuration de la Figure 5.17, celle-ci donne la déformée y en chaque point par :

$$0 < x < \frac{l}{2} \quad y = -\frac{P}{48EI} x(3l^2 - 4x^2)$$

où I est le moment d'inertie de la section de la poutre par rapport au plan neutre.

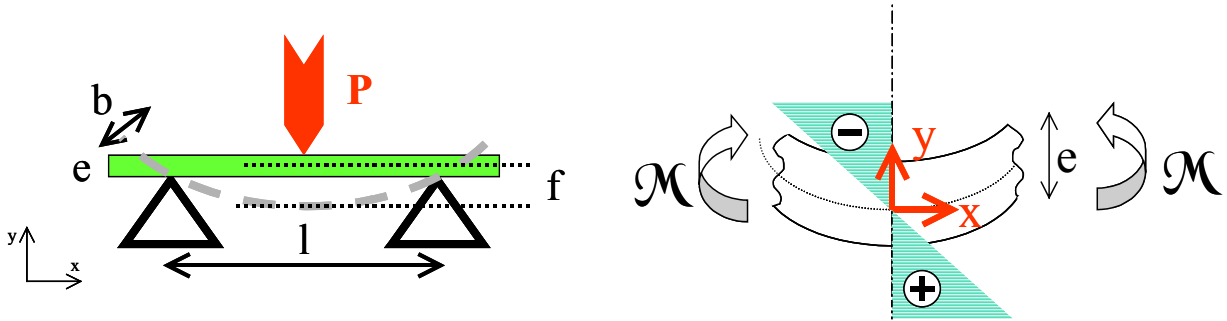


Figure 5.17 - Représentation schématique d'une poutre en flexion trois points.

La flèche f , ci-dessus, est la déformée au point milieu ($x = l/2$), endroit où elle est maximale. Le moment fléchissant M engendre un gradient de contrainte linéaire $\sigma_{xx} = \frac{M}{I} y$ entre $\pm \sigma_{\max}^{\text{élast}}$ dans la poutre. Les relations permettant le calcul des contraintes et des déformations à l'endroit où elles sont maximales s'expriment :

$$\sigma_{\max}^{\text{élast}} = \frac{3l}{2be^2} P \quad \epsilon_{\max}^{\text{élast}} = \frac{6e}{l^2} f$$

On vérifie ici qu'à une faible déformation correspond une flèche importante.

5.8.2 Fluage en flexion

Lorsque le matériau a un comportement viscoplastique, la répartition des contraintes dans l'éprouvette est plus complexe. (Timoshenko 1930) montre qu'il y a une redistribution des contraintes dans l'échantillon au cours d'un essai de fluage. Il existe un fluage transitoire de structure pendant lequel la vitesse de fléchissement diminue alors que les contraintes se redistribuent dans l'éprouvette. Lorsque cette redistribution est achevée, si le matériau suit une loi de Norton symétrique avec un exposant n de contrainte, l'état stationnaire des contraintes peut être calculé, et la contrainte vue par la fibre la plus tendue s'exprime :

$$\sigma_{\max} = \sigma^* = \frac{2n+1}{3n} \sigma_{\max}^{\text{élast}}$$

Dans le cas d'un fluage newtonien ($n = 1$), le champ de contraintes demeure celui de l'élasticité. Pour des valeurs supérieures d'exposant, la contrainte maximale diminue donc au cours de l'essai. La Figure 5.18 montre l'influence de l'exposant de contrainte sur la redistribution des contraintes.

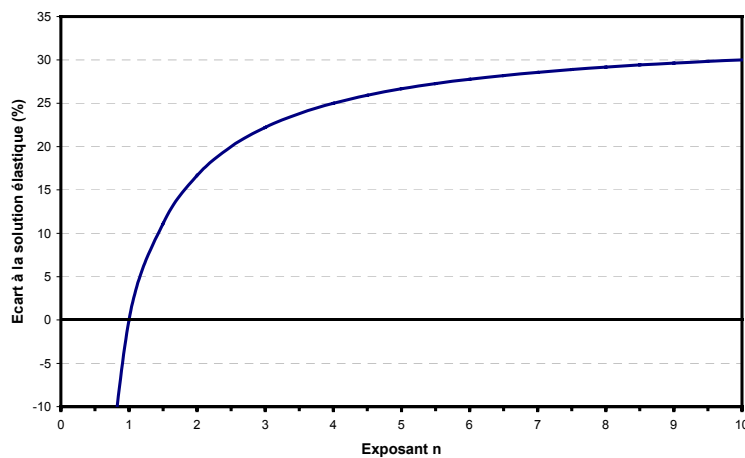


Figure 5.18 - Ecart entre la contrainte maximale en fluage stationnaire et la contrainte maximale en élasticité.

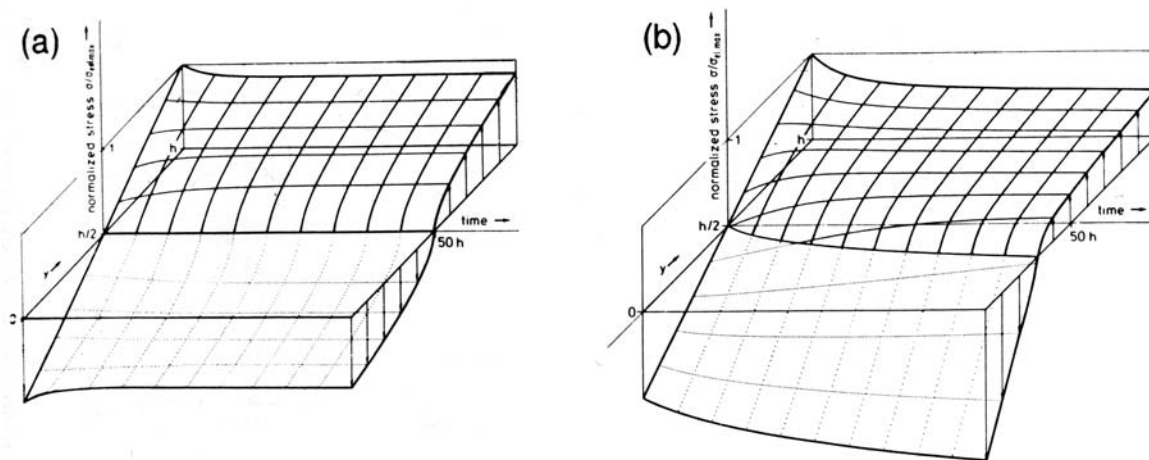


Figure 5.19 - Profils de contraintes pendant le fluage en flexion d'une poutre en fonction du temps pour un matériau à comportement (a) symétrique ou (b) dissymétrique. D'après (Cobrt 1984).

Pour les faibles valeurs de n , l'erreur reste admissible, de l'ordre de 15% lorsque n vaut 2. (Cohrt 1984) a calculé l'évolution dans le temps des contraintes. La Figure 5.19 (a) illustre l'évolution de la contrainte pour un matériau dont le fluage est symétrique. Le plan neutre de la poutre ne bouge pas et la distribution des contraintes tend rapidement vers l'état stationnaire de Timoshenko. Dans ce cas particulier, l'état stationnaire est atteint en moins d'une heure, comme l'illustre la Figure 5.20. Cohrt a effectué des calculs analogues pour un matériau dissymétrique. Cette démarche est plus complexe, et il n'existe pas de solution analytique simple à ce problème. Dans ce cas, l'axe neutre se déplace vers la demi-éprouvette initialement en compression. L'écart avec la solution produite par l'élasticité est beaucoup plus important. Avec le jeu de coefficients utilisé par Cohrt, la contrainte maximale de traction diminue de moitié par rapport au chargement initial ; alors que du côté compression la contrainte est multipliée par plus d'un facteur deux. Il faut alors près de 30 heures pour atteindre un état stationnaire.

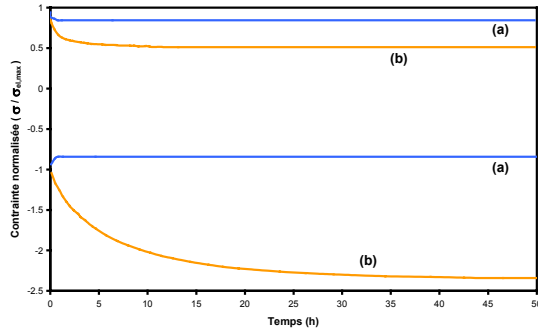


Figure 5.20 - Contraintes sur les fibres extérieures pour un matériau symétrique (a) ou dissymétrique (b).

5.8.3 Régime stationnaire

Au cours des essais de fluage en flexion, on assiste donc en général à une redistribution des contraintes dans l'échantillon. Le type de dépendance de la vitesse de fluage à la contrainte (exposant de contrainte dans une loi de type Norton) est un paramètre primordial dans cette évolution, ainsi que la dissymétrie éventuelle de comportement entre traction et compression. L'interprétation de tels essais n'est pas simple ; il faut notamment tenir compte d'un transitoire dit "de structure", qui vient se superposer avec le régime de déformation primaire du matériau en fluage. Nous verrons ultérieurement que pour prendre en compte ce phénomène, il est nécessaire d'avoir recours à un calcul par éléments finis.

Dans un premier temps, nous nous proposons d'interpréter nos essais en caractérisant le fluage stationnaire apparent. Pour simplifier les calculs nous émettons des hypothèses fortes dont la validité devra être vérifiée par la suite : le fluage du matériau est supposé symétrique et les vitesses de déformation pseudo-stationnaire interprétées correspondent à un régime stabilisé, à la fois stationnaire pour la structure et stationnaire pour le matériau. Alors il est possible de décrire, dans ce cas particulier plus simple, les déformations et les contraintes en régime stationnaire en fonction de la flèche et de la charge appliquée sur l'éprouvette ainsi que sa géométrie.

Par exemple, (Hollenberg 1971) suppose une loi de comportement unique, symétrique, du matériau sous la forme $\varepsilon(t, \sigma) = \sigma^n J(t)$, qui se simplifie à l'état stationnaire par la loi puissance $\dot{\varepsilon} = A\sigma^n$. L'axe neutre reste donc au centre de l'éprouvette. La déformation maximale au niveau du point d'appui supérieur est alors fonction de la flèche f :

$$\varepsilon_{\max} = \varepsilon^* = \frac{2e(n+2)}{l^2} f = \frac{n+2}{3} \varepsilon_{\max}^{\text{élast}}$$

Il y a une augmentation des déformations. La solution produite par la théorie de l'élasticité sous-estime de 30% la déformation réelle lorsque $n = 2$. Dans une interprétation simplifiée à l'aide des solutions de l'élasticité, la vitesse de déformation stationnaire est :

$$\begin{aligned}\varepsilon^{\text{élast}} &= \frac{3}{n+2} \varepsilon^* & \sigma^{\text{élast}} &= \frac{3n}{2n+1} \sigma^* \\ \dot{\varepsilon}_{\text{Stationnaire}}^* &= A e^{\frac{-Q}{RT}} (\sigma^*)^n \\ \dot{\varepsilon}_{\text{Stationnaire}}^{\text{élast}} &= \frac{3}{n+2} \dot{\varepsilon}_{\text{Stationnaire}}^* = \frac{3A}{n+2} \left(\frac{2n+1}{3n} \right)^n e^{\frac{-Q}{RT}} (\sigma^{\text{élast}})^n\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}\left. \begin{array}{l} \varepsilon^{\text{élast}} \\ \sigma^{\text{élast}} \end{array} \right\} & \text{Solutions élastiques} \\ \left. \begin{array}{l} \varepsilon^* \\ \sigma^* \end{array} \right\} & \text{Valeurs réelles}\end{aligned}$$

Afin d'identifier les paramètres de fluage n et Q , le logarithme de la déformation élastique s'exprime :

$$\log(\dot{\varepsilon}_{\text{Stationnaire}}^{\text{élast}}) = \log\left(\frac{3A}{n+2} \left(\frac{2n+1}{3n}\right)^n\right) - \frac{Q}{RT} + n \log(\sigma^{\text{élast}})$$

Dans ces conditions, dans l'espace $\log(\dot{\varepsilon}_{\text{Stationnaire}}^{\text{élast}})$ et $\log(\sigma^{\text{élast}})$, le coefficient directeur de la droite est l'exposant de contrainte n du matériau. De même, Q peut être évaluée dans l'espace $\log(\dot{\varepsilon}_{\text{Stationnaire}}^{\text{élast}})$ en fonction de $1/RT$.

Par la suite, les résultats seront présentés sous forme de déformations et contraintes calculées par les lois de l'élasticité, dans le seul cadre du fluage stationnaire.

5.9 Validations des mesures

Avant de commencer les essais, quelques tests préliminaires ont été réalisés, afin de vérifier le comportement du dispositif expérimental et de valider les mesures ainsi réalisées.

5.9.1 Stabilité thermique

Nous nous sommes attachés en premier lieu à vérifier la stabilité des mesures au cours du temps, particulièrement importante dans la réalisation d'essais de fluage. Pour cela, un barreau de graphite a été soumis à une charge constante. En dessous de 2 000°C, le graphite conserve un comportement élastique, et la flèche de l'éprouvette ne doit donc pas évoluer lorsque la température est fixe : l'extensomètre doit donc nous indiquer une valeur constante au cours du temps. Plusieurs paliers de température ont été réalisés entre 800 et 1 500°C, pour des temps de maintien de plus d'une dizaine d'heures. Un exemple de résultat obtenu est donné par la Figure 5.21. Pour toutes les températures, les instabilités de mesure demeurent faibles (inférieures à $\pm 2 \mu\text{m}$ pour 10 heures de maintien), et il semble plutôt s'agir d'oscillations (plus faciles à filtrer) plutôt que d'une dérive dans le temps. Les montées en température provoquent une diminution de la mesure extensométrique : une dilatation du système mécanique modifie les distances de référence pour les mesures. A cela il faut ajouter la variation du module d'élasticité du matériau qui peut modifier légèrement la rigidité de l'éprouvette. Finalement l'extensomètre laser est stable dans des conditions isothermes et sa précision peut être estimée à $\pm 2 \mu\text{m}$.

Ces essais ont également servi pour vérifier la stabilité de la mesure de charge. La charge reste tout à fait stable en cours d'essai. La précision reste de l'ordre de 1‰ de la capacité totale du capteur, soit environ $\pm 0,05$ N.

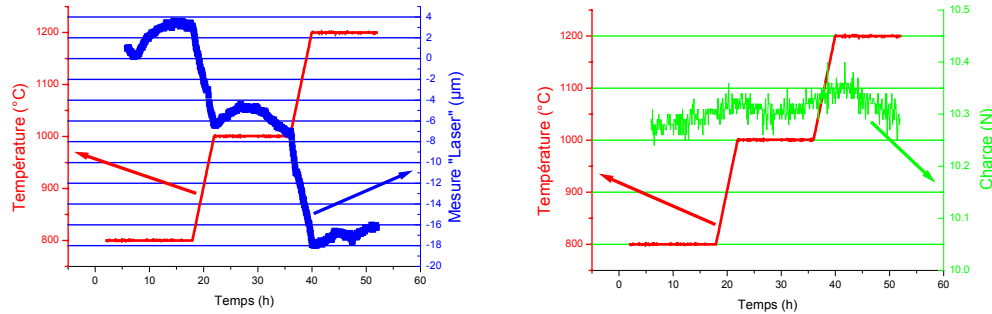


Figure 5.21 - Test de stabilité des mesures de flèche et de la charge en température.

Il a fallu vérifier que toutes les technologies utilisées pouvaient fonctionner ensemble sur d'importantes périodes. Les essais de stabilité thermique ont vérifié cette fiabilité sur des temps longs. Dans notre étude, nous avons choisi un compromis pour obtenir des temps d'essais suffisamment longs pour y déceler tous les stades du fluage, et limiter la durée à une semaine pour obtenir une base expérimentale minimale d'essais.

5.9.2 Essais mécaniques

Pour effectuer des tests d'écroutissage, il est possible de contrôler la vitesse déplacement de la traverse entre $40 \mu\text{m.s}^{-1}$ et $0,2 \mu\text{m.s}^{-1}$. Bien sûr, la traverse peut se déplacer à des vitesses moindres, surtout en régulation lors d'essais de fluage. En fait, pour effectuer des essais à vitesse imposée, le contrôle ne se fait pas sur le déplacement proprement dit, mais sur la vitesse maximale d'entraînement de la traverse.

Les essais de fluage sont plus simples à mettre en œuvre. La cellule de charge est un appareil de mesure beaucoup moins sensible que l'extensomètre, et il est relativement simple de réguler un essai en force imposée. Par abus de langage, cet essai est appelé fluage, bien que ce soit à force appliquée constante et non pas à contrainte fixe, mais cette situation est fréquemment rencontrée lors de tests de fluage.

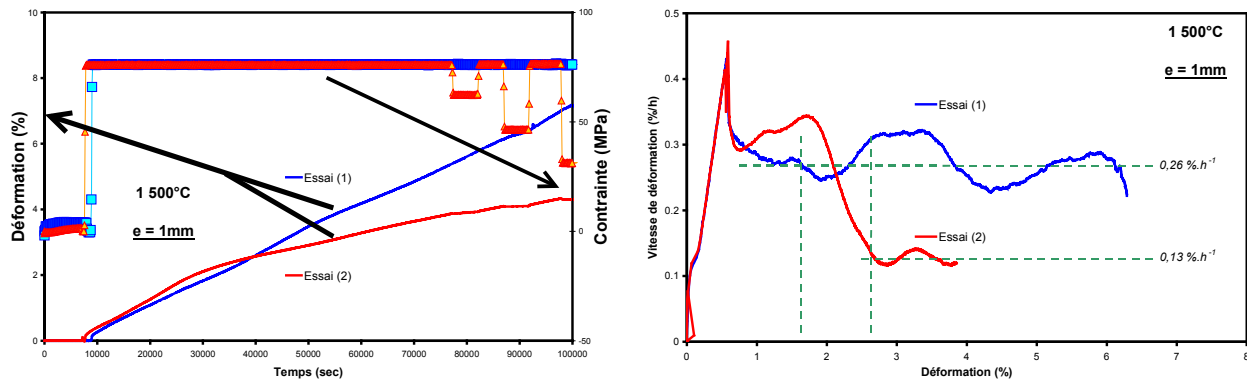


Figure 5.22 - Fluage en flexion du dioxyde d'uranium à 1 500°C sous 75 MPa.

Deux essais de fluage ont été menés dans les mêmes conditions sous 75 MPa à 1 500°C sur des éprouvettes de mêmes dimensions. Les courbes résultantes sont représentées sur la Figure 5.22. On observe un facteur deux entre les vitesses de déformation stationnaires apparentes : cet écart reste admissible, d'autant plus que l'on n'est pas certain d'avoir atteint un régime réellement stationnaire et que les deux essais diffèrent par l'importance du fluage primaire.

Les essais de relaxation, ou plus exactement à fléchissement constant, sont complémentaires car il est ainsi possible d'atteindre de très faibles vitesses de déformation en des temps nettement plus courts que par des essais de fluage équivalents (Lemaitre 1988). D'autre part, au cours de l'essai, le matériau subit une contrainte variable, ce qui en fait donc un excellent test pour vérifier la validité des lois de comportement obtenues en fluage. Enfin, ce type d'essai se rapproche plus des conditions d'utilisation en réacteur, où le gonflement (des déformations et vitesses de déformation très faibles) de l'oxyde semble diriger les sollicitations. Toutefois, cet essai est plus complexe à mettre en œuvre, surtout avec une méthode de mesure de déplacement aussi sensible que l'extensométrie Laser.

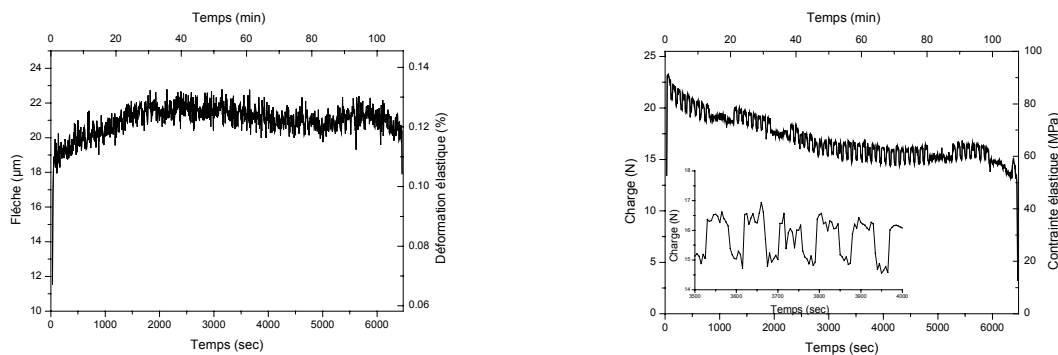


Figure 5.23 - Relaxation à 1 350°C, obtenue en bloquant la traverse (pas d'asservissement sur l'extensomètre).

Pour effectuer un essai de relaxation, une solution simple consiste à charger l'éprouvette, puis bloquer la traverse et mesurer l'évolution de la force appliquée. Un exemple de résultat obtenu à 1 350°C est décrit par la Figure 5.23. On vérifie ici que la relaxation de la ligne de charge est négligeable par rapport à celle de l'éprouvette puisque seule une hausse initiale de 5 µm (0,015 %) est indiquée par l'extensomètre en début d'essai. Cette erreur est minime et du même ordre de grandeur que l'incertitude de mesure du laser, ± 2 µm. Plus étonnamment, la réponse en charge montre des oscillations de charge relativement importantes, de 1,5 N (6 MPa). Ces variations brusques de la force sont dues à des variations de pression du système de refroidissement en liaison directe avec la ligne de charge inférieure.

Alors, pour effectuer un essai de relaxation correct, il faut donc réguler le système à flèche constante. Cette condition n'est pas évidente à réaliser, car il s'agit de prendre pour consigne une mesure issue d'un capteur Laser très sensible d'une part au dispositif expérimental lui-même et d'autre part à tout l'environnement extérieur. Le signal fourni par l'extensomètre peut vite prendre des valeurs extrêmes n'ayant aucun fondement physique. Ces modifications brutales sont supposées temporaires et très rapides, il est nécessaire d'avoir recours à un filtre passe-bas pour éliminer ces artéfacts de mesure. En fait le moteur du châssis est utilisé comme filtre passe-bas en limitant au plus sa vitesse d'entraînement. Dans ces conditions il est possible de réguler le système à partir du signal fourni par l'extensomètre Laser, i.e. de réaliser des tests à fléchissement contrôlé. Un essai réalisé dans ces conditions à 1 350°C est exposé sur la Figure 5.24. Si l'on conserve alors un bruit sur la mesure de la flèche, la variation de charge mesurée est, avec cette méthode, beaucoup plus continue et réaliste.

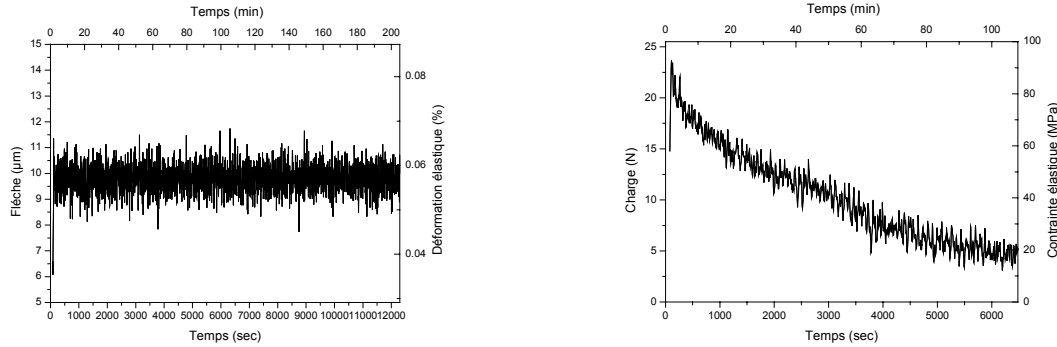


Figure 5.24 - Relaxation à 1 350°C, à fléchissement imposé.

5.9.3 Mesures de modules d'élasticité

Afin de vérifier l'aptitude de notre système expérimental à mesurer des grandeurs fiables lorsque charge et flèche évoluent simultanément, nous avons procédé à des essais de chargement-déchargement successifs sur différents matériaux à comportement élastique.

Tout d'abord, à température ambiante, un barreau de « tôle bleue » traitée (XC 38 TS) a été soumis à plusieurs cycles. Ce matériau possède une limite d'élasticité élevée et un module d'Young d'environ 200 GPa. Quelques cycles sont illustrés sur la Figure 5.25. Il s'agit de créneaux imposés en charge, pour cet exemple entre 0 et 40 N. On observe une excellente reproductibilité des résultats.

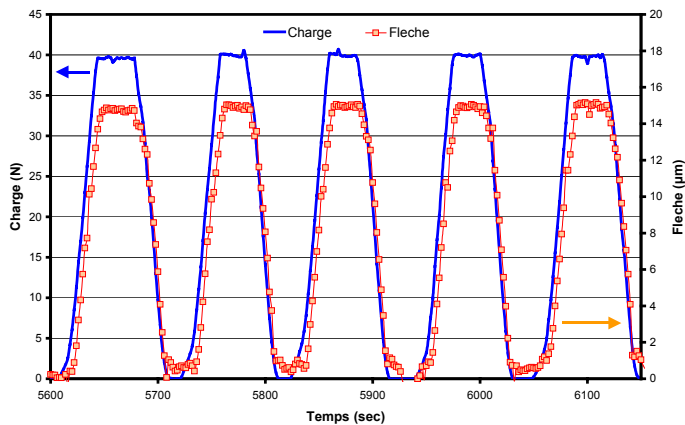


Figure 5.25 – Comportement mécanique d'une éprouvette de XC 38 à 25°C lors d'un cyclage en charge.

Pour sceller les limites du dispositif, une autre éprouvette de « tôle bleue » subit des cycles mécaniques, de type créneau, avec une charge minimale nulle et une valeur maximale variant de 40 à 1 N. Ces cycles sont présentés sur la partie (a) de la Figure 5.26. Ainsi les limites du dispositif expérimental seront éventuellement mises en évidence soit en charge soit en fléchissement. En traduisant les valeurs de force et de déplacement en contraintes et déformations, la partie (b) présente les courbes de chargement du matériau correspondantes. Un module d'élasticité peut être estimé à environ 200 GPa, surtout pour les cycles à fortes déformations. Les courbes de chargement présentent un léger phénomène d'hystérésis, peut être dû aux faibles frottements sur la partie supérieure du système de charge.

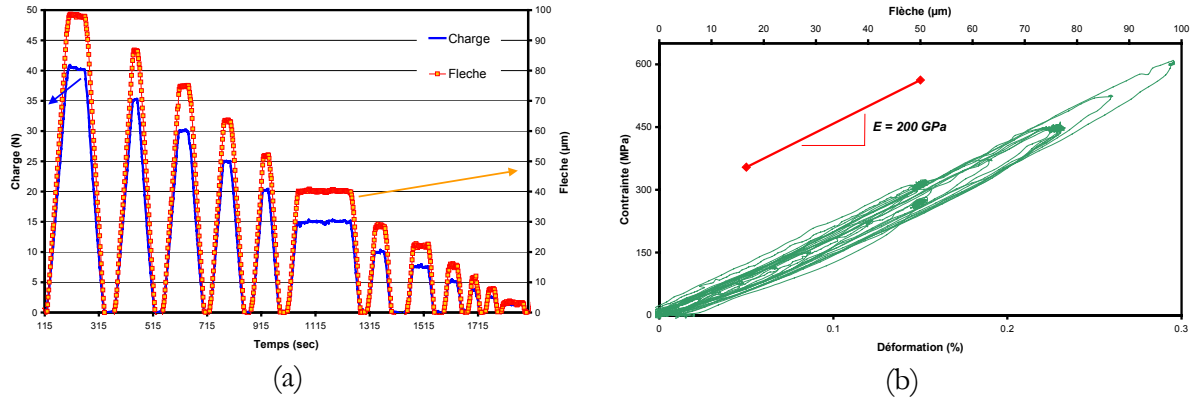


Figure 5.26 - Courbes de chargement d'une éprouvette XC 38 TS à température ambiante : mise en évidence d'un module élastique de 200GPa.

Ces essais montrent un pied de courbes, schématisé sur la Figure 5.27, d'au moins 20 μm qui correspondent à la mise en place du système (rouleaux d'appui et pièce U en graphite). Cette valeur est faible en absolu, par contre elle n'est pas négligeable vis-à-vis des déformations maximales atteintes. Pour chaque cycle est relevée la flèche maximale et calculés les modules d'élasticité apparents au chargement et au déchargement. La Figure 5.27 montre la manière de mesurer les modules apparents. Il s'agit de prendre la tangente aux courbes correspondant aux plus fortes déformations et sur une plage maximale de fléchissement, à la fois en fin de chargement et en début de déchargement.

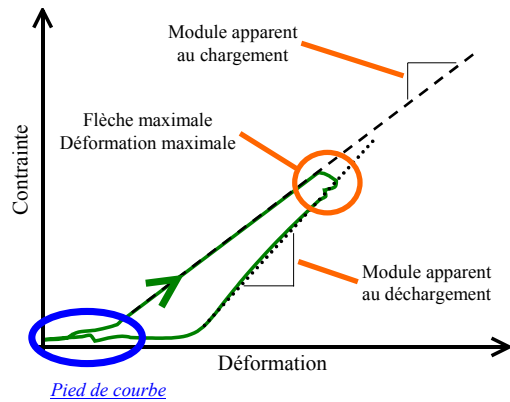


Figure 5.27 – Mesures des modules d'élasticité apparents sur les courbes de chargement.

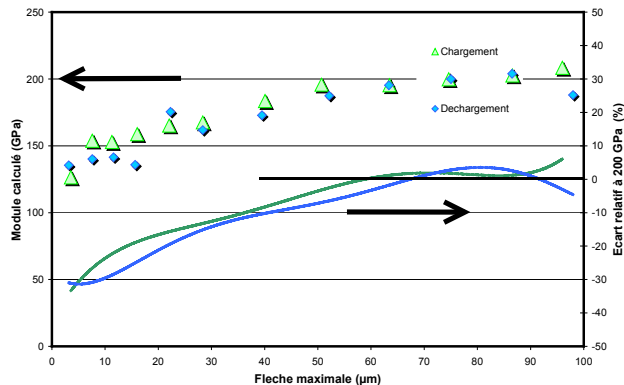


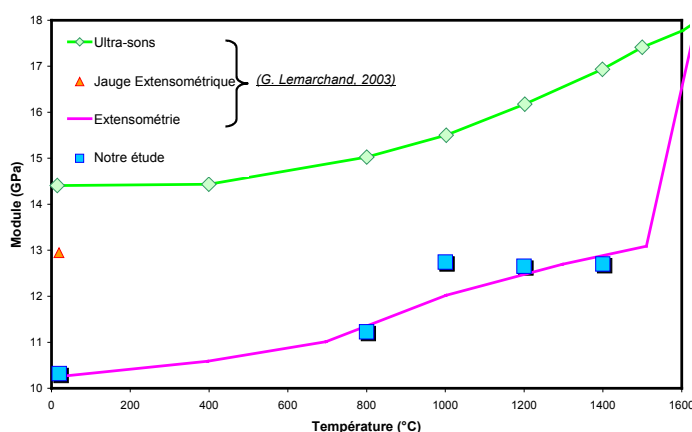
Figure 5.28 - Modules apparents d'un barreau de XC 38 TS à 25°C.

La Figure 5.28 décrit l'évolution des modules apparents en fonction de la flèche maximale atteinte. Lorsque la déformation, ou la charge, maximale atteinte est élevée, il est possible de calculer un module d'Young comparable à 200 GPa. Une flèche minimale de 40 μm est nécessaire pour obtenir le module à 10% près. Pour les valeurs plus faibles, l'écart augmente. La mise en place du système surestime les déformations, le module réel est donc toujours sous-estimé. Il faut une flèche, ou une charge, minimale pour obtenir des valeurs correctes des caractéristiques élastiques de l'éprouvette.

Il faut noter ici que le module attendu du dioxyde d'uranium à température ambiante est également de 200 GPa. Les éprouvettes de XC 38 TS ont des géométries similaires aux barreaux de UO_2 que nous utilisons par la suite. Ils présentent donc une rigidité équivalente. Le dioxyde d'uranium est une céramique fragile à basse température, et ne supporte pas ces niveaux de contrainte. Il nous est impossible de vérifier les limites du dispositif en utilisant une céramique.

En température, les écarts devraient augmenter, les incertitudes de mesures augmentent, notamment pour le laser qui passent de $\pm 0,3$ à ± 2 μm . Afin de procéder à des vérifications analogues à chaud, une éprouvette en graphite a été sollicitée en température.

Figure 5.29 - Module d'Young du graphite en fonction de la température.



Une démarche similaire à celle utilisée pour caractériser la tôle XC 38 TS, est appliquée au barreau de graphite. La Figure 5.29 décrit les modules d'élasticité apparents mesurés à différentes températures pour des flèches d'au moins 40 μm . Nos mesures sont en bon accord avec celles effectuées par (Lemarchand 2003). S'il faut accorder un crédit relatif aux valeurs absolues, il faut remarquer que les mesures effectuées ici décrivent correctement l'augmentation du module du graphite.

5.9.4 Mesures de déformations permanentes plastiques

Afin de confirmer les mesures de déformation effectuées par l'extensomètre laser, il est possible de les comparer avec la flèche permanente finale mesurée, à posteriori, sur une éprouvette à l'issue d'un essai de fluage. Les mesures effectuées dans ce paragraphe concernent des éprouvettes de dioxyde d'uranium fléchies en fluage à différentes températures. Nous avons systématiquement cherché à mesurer la flèche finale, mais, malheureusement, les éprouvettes se sont souvent fracturées lors du refroidissement du four, sans doute en raison d'une adhérence créée à chaud entre l'éprouvette et ses appuis et des incompatibilités de déformation entre l'éprouvette et ses appuis lors du refroidissement.

Un exemple de calcul est illustré par la Figure 5.30. En général, 2 ou 4 morceaux sont recueillis après essai à froid, et la répartition des fragments est symétrique par rapport au point

d'appui central. Aussi la rupture est supposée s'opérer au centre de l'éprouvette. Il suffit alors de s'intéresser à une seule moitié du profil de la céramique cassée. L'épaisseur de l'éprouvette, visible sur le profil, est connue ; cette dimension sert de référence pour la mise à l'échelle de la photographie. Il faut tracer la tangente à l'éprouvette en son centre, repérer les différents points d'appui. Il suffit alors d'évaluer la distance entre le point d'appui extérieur et la tangente tracée précédemment. Cette mesure correspond à la flèche de l'éprouvette. L'exemple utilisé ici donne $680\ \mu\text{m}$.

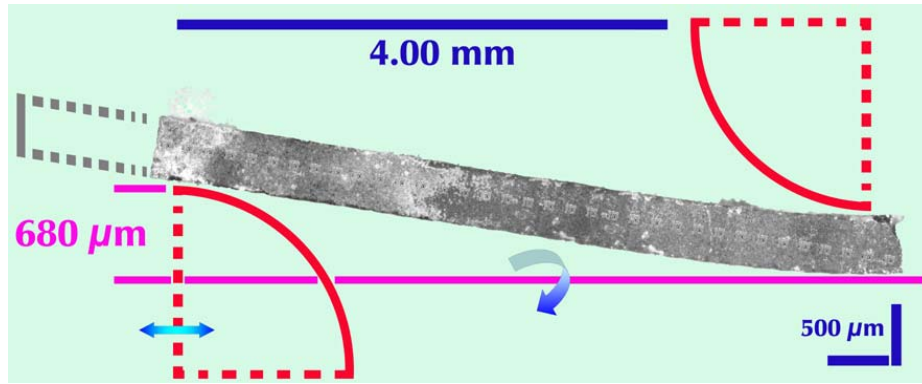


Figure 5.30 - Evaluation de la déformation plastique, de la flèche, de l'éprouvette après un retour à froid.

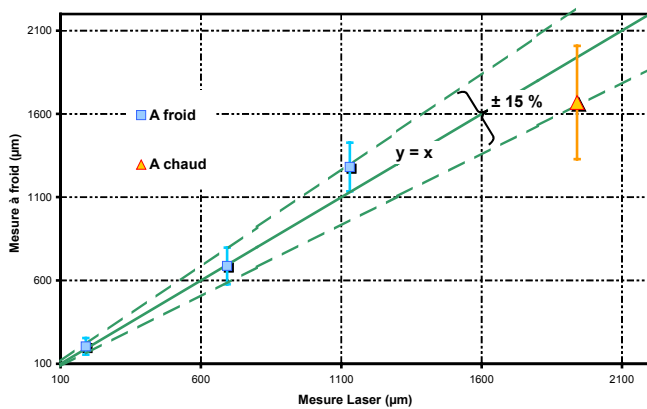


Figure 5.31 - Comparaison des mesures de déformations plastiques.

Une comparaison avec les mesures extensométriques est représentée pour trois éprouvettes sur la Figure 5.31. L'accord entre les deux mesures est obtenu à $\pm 15\%$. Sur ce graphique est également reportée une mesure de flèche réalisée par observation optique à haute température, comme représenté sur la photographie de la Figure 5.14. Cette estimation est également en bon accord avec les mesures extensométriques.

5.10 Conclusion

Afin de caractériser le comportement mécanique à chaud du dioxyde d'uranium, nous avons conçu un dispositif de flexion sous atmosphère contrôlée à haute température. L'essai de flexion permet notamment de mesurer avec une bonne précision de faibles déformations, permettant de se rapprocher des conditions de sollicitation subies par la pastille en rampe de puissance. L'étude se réduit à la céramique nucléaire stœchiométrique, l'atmosphère réductrice utilisée est de l'argon hydrogéné, pour se placer dans les mêmes conditions expérimentales que celles utilisées au CEA.

L'ensemble du dispositif est placé dans une enceinte double paroi refroidie par eau. Un four en graphite à induction indirecte permet d'atteindre les températures élevées. Un thermocouple de type WRe5% / WRe26% couplé à un régulateur Eurotherm permet de contrôler la température dans le four, où le gradient thermique est faible.

Les lignes de charge ont été conçues en fonction de la géométrie des éprouvettes. En effet, le cahier des charges de notre étude nous imposait de prélever les barreaux dans des pastilles réelles de combustible. L'entraxe a donc été fixé à 10 mm. Les lignes de charge en céramique autorisent des températures d'essais jusqu'à 1 500°C. La mesure des déplacements est assurée par un extensomètre Laser avec une précision en température de $\pm 2 \mu\text{m}$. L'appareil est adapté pour faire des mesures à haute température, notamment grâce à divers filtres optiques, analogiques et numériques.

Nous avons vérifié le comportement global du dispositif expérimental. La machine fait preuve d'une très faible dérive thermique. Outre des essais de fluage à charge imposée ou d'écrouissage à vitesse de déformation imposée, moyennant quelques précautions, il est possible d'effectuer des essais de relaxation. Les mesures ont été vérifiées en testant le comportement élastique de différents matériaux connus. Enfin, une mesure des déformations plastiques résultantes d'essais de fluage montre un bon accord avec les valeurs fournies par l'extensomètre.

Pour terminer, notons que la mise au point de ce dispositif expérimental a été particulièrement laborieuse, puisque presque deux années de la durée de la thèse y ont été consacrées, limitant donc fortement le temps disponible pour la réalisation et l'exploitation des essais.

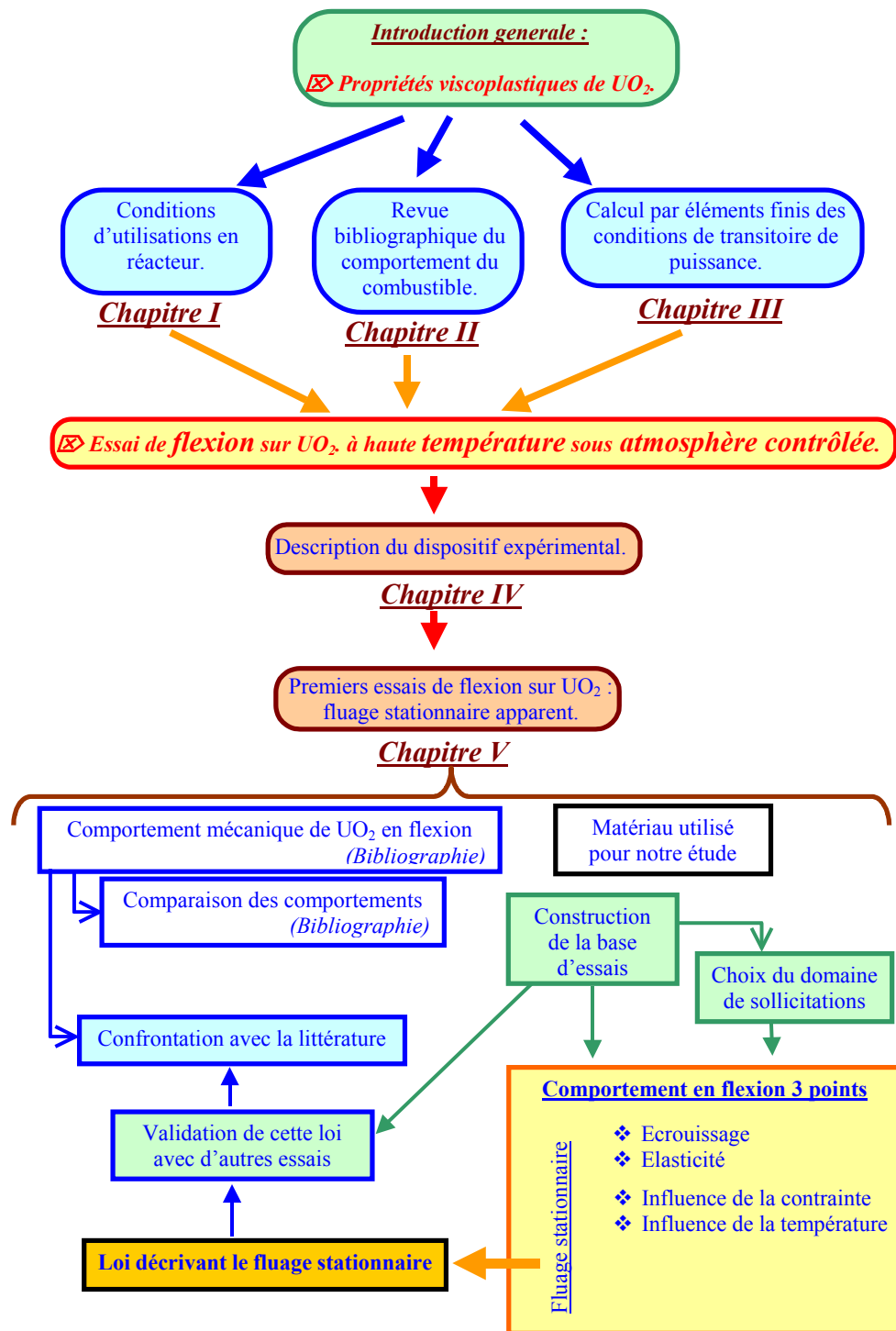
« Attention, l'alumine est maline ! »
Ludovic Massard, printemps 2002

6 *Fluage du dioxyde d'uranium en flexion*

Les devises Shadok



EN ESSAYANT CONTINUUELLEMENT
ON FINIT PAR RÉUSSIR. DONC:
PLUS ÇA RATE, PLUS ON A
DE CHANCES QUE ÇA MARCHE.



6 FLUAGE DU DIOXYDE D'URANIUM EN FLEXION

- 6.1 COMPORTEMENT DU DIOXYDE D'URANIUM EN FLEXION, BIBLIOGRAPHIE
 - 6.1.1 Comportement vis-à-vis de la fissuration
 - 6.1.2 Fluage du dioxyde d'uranium en flexion
- 6.2 COMPARAISON DES COMPORTEMENTS
- 6.3 MATERIAU UTILISE POUR NOTRE ETUDE
 - 6.3.1 Microstructure
 - 6.3.2 Découpes des éprouvettes
- 6.4 INTERPRETATION DES RESULTATS
- 6.5 PRESELECTION DES TEMPERATURES D'ESSAI.
- 6.6 COMPORTEMENT EN FLEXION
 - 6.6.1 Ecrouissage et élasticité à 1 350°C
 - 6.6.2 Fluage stationnaire à 1 350°C, influence de la contrainte
 - 6.6.3 Fluage stationnaire sous 75 MPa, influence de la température
 - 6.6.4 Validation de l'exposant de contrainte, exploitation d'essai de relaxation
 - 6.6.5 Vérification de l'énergie d'activation, retour sur les essais anisothermes
- 6.7 CONFRONTATION DE NOS RESULTATS AVEC LA LITTÉRATURE
- 6.8 CONCLUSIONS

6.1 Comportement du dioxyde d'uranium en flexion, bibliographie

Dans un premier temps, nous allons faire un état des lieux des connaissances sur le comportement du combustible en flexion. Il faut avant tout noter que les données en flexion sont nettement moins nombreuses que celles de compression.

6.1.1 Comportement vis-à-vis de la fissuration

Pour caractériser le comportement vis-à-vis de la fissuration, Tottle a utilisé des essais de flexion 4 points (Tottle 1965). Des barreaux ont directement été frittés aux dimensions de 63,5 x 8 x 8 mm³. La densité finale obtenue est de 96% pour une taille de grains variant entre 10 et 20 µm. Les échantillons ont été testés, à différentes températures (de 25 à 1 900°C), sous vide, à vitesse de déformation imposée. La Figure 6.1 reprend différentes courbes de chargement obtenues. L'UO₂ subit une transition de comportement d'élastique-fragile vers viscoplastique entre 1 250°C et 1 500°C. Comme observé sur la plupart des matériaux, la charge maximale atteinte diminue quand la température augmente et lorsque la vitesse de déformation décroît. Les auteurs considèrent que la rupture est principalement guidée par la porosité.

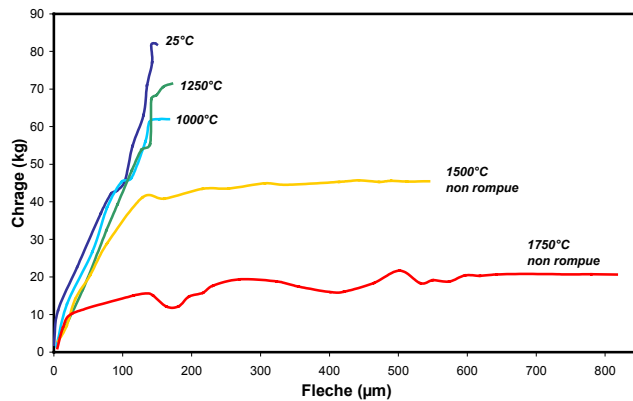
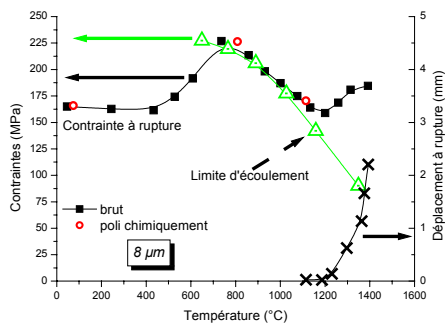


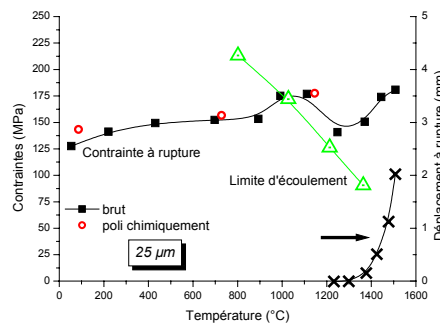
Figure 6.1 - Courbes de chargements en flexion 4 points à différentes températures.

(Tottle 1965)

Evans a poussé plus loin l'analyse en se basant sur un dispositif de flexion 3 points (Evans 1969a). Les éprouvettes sont frittées aux environs de 1 700°C et aux dimensions finales voulues, soit $24 \times 6 \times 5 \text{ mm}^3$, avec une densité finale de 97%, la taille de grains variant de 8 à 25 μm . Les essais sont menés sous argon afin de maintenir la stœchiométrie de l'oxyde. Les contraintes considérées sont les contraintes vues par la fibre la plus tendue, calculées par les lois de l'élasticité. La dépendance à la température de la contrainte à rupture est illustrée par la Figure 6.2 pour deux tailles de grains, 8 μm sur la partie (a) et 25 μm sur la partie (b). La température de transition de comportement se situe vers 1 300°C ; elle est à relier avec la forte hausse de la déformation à rupture. Elle augmente avec la vitesse de sollicitation et légèrement avec la taille de grains (Canon 1971). Les essais de compression montrent une transition de comportement pour des températures plus faibles.



(a)



(b)

(Evans 1969a)

Figure 6.2 - Evolution de la contrainte à rupture de UO_2 en fonction de la température : tailles de grain 8 et 25 μm .

Il apparaît également un pic entre 600°C et 1 200°C, la température correspondant au maximum de la résistance à la rupture augmentant avec la taille de grains. De plus, l'état de surface (brut ou poli chimiquement) n'a apparemment pas d'influence sur les contraintes à rupture. Les fractographies réalisées montrent une rupture largement transgranulaire pour les basses températures dans les microstructures à grains fins. Près de la transition, la rupture demeure transgranulaire, mais sa surface change quelque peu d'aspect : elle devient moins anguleuse et moins de pores y sont révélés. Une comparaison est faite sur la Figure 6.3.

Des essais de compression ont également été effectués sur le même type de matériau. Ils ont permis de déduire l'évolution de la limite d'écoulement en fonction de la température, représentée par la courbe verte (symbole triangulaire creux) sur la Figure 6.2. Ainsi, lorsque la contrainte à rupture en flexion est inférieure à la contrainte d'écoulement, on a à faire à une rupture

fragile à partir de défauts préexistants, porosité ouverte et gros pores (de taille supérieure à $50\text{ }\mu\text{m}$). Cette hypothèse a été reprise par Roberts, qui a montré qu'une augmentation de porosité entraîne une baisse de la contrainte maximale (Roberts 1972). Aux températures intermédiaires, les contraintes à rupture (en flexion) et d'écoulement (en compression) sont similaires, et la rupture des grains interviendrait par mécanismes dislocationnels. Enfin, aux très hautes températures, la limite d'écoulement devient très inférieure à la contrainte à la rupture, cette dernière devenant ductile (Evans 1969a). Les différents domaines sont résumés sur la Figure 6.4.

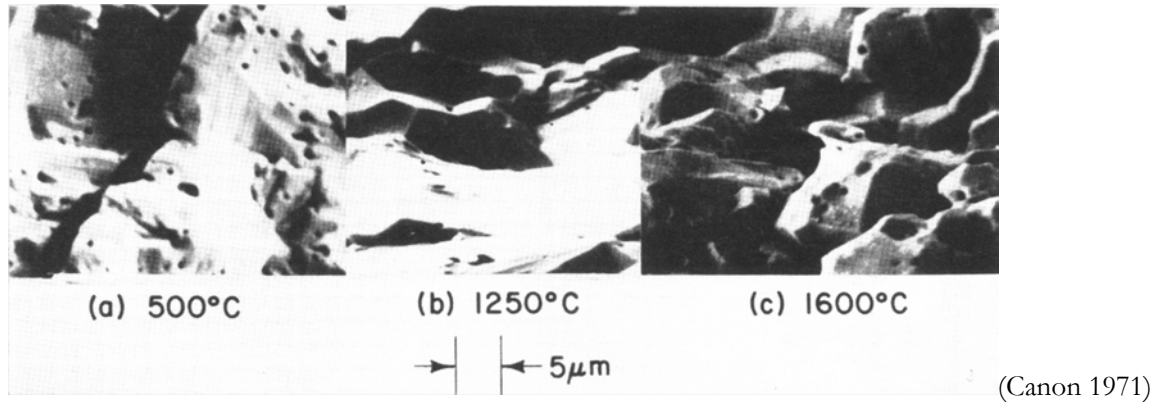


Figure 6.3 - Fractographies effectuées au MEB (taille de grain $8\text{ }\mu\text{m}$) pour différentes températures illustrant la transition de comportement.

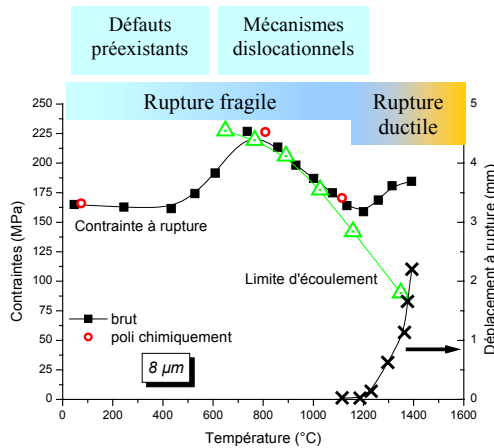


Figure 6.4 - Domaines et mécanismes de rupture du dioxyde d'uranium en flexion en fonction de la température.

6.1.2 Fluage du dioxyde d'uranium en flexion

Armstrong s'est spécialement intéressé au fluage en flexion trois points de UO_2 stœchiométrique (Armstrong 1962). Pour cela, les éprouvettes ont été prélevées dans des pastilles de 2,5 cm de diamètre, utilisées dans ses réacteurs par "Atomic Energy of Canada Limited". Des barreaux de dimensions $21,7 \times 3 \times 1,8\text{ mm}^3$ y ont été usinés, pour être sollicités en flexion trois points avec un entraxe de 19 mm, sous atmosphère d'hydrogène. Ces barreaux présentaient une densité de 96% de la densité théorique. La Figure 6.5 reprend quelques courbes typiques obtenues par ces auteurs. Les valeurs des contraintes et des déformations correspondent à la solution d'une poutre élastique en flexion.

Ces courbes correspondent à des résultats typiques de fluage : après chargement de l'éprouvette, la vitesse de fléchissement diminue jusqu'à atteindre un état stationnaire apparent. Aucun fluage tertiaire n'a pu être observé. A la fin des essais, lors du déchargement, une recouvrance apparaît sous forme de « viscoélasticité » à relaxation rapide.

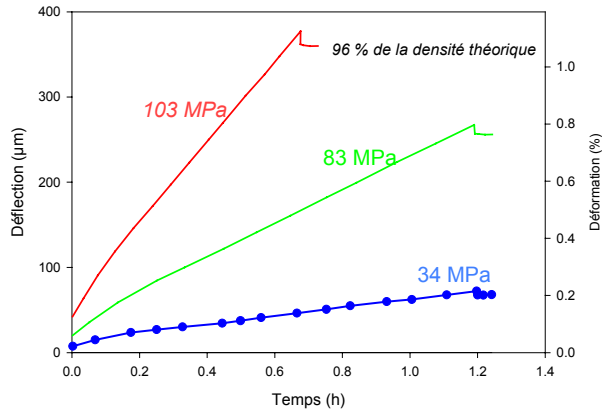


Figure 6.5 - Courbes de fluage en flexion 3 points obtenues à 1 400°C.

(Armstrong 1962)

L'influence de la température sur le comportement du matériau est décrite par la Figure 6.6. Plusieurs essais ont été menés à différentes températures entre 1 250 et 1 400°C, sous une contrainte de 70 MPa. Les vitesses de déformation en fluage stationnaire apparent dépendent de la contrainte appliquée, comme l'illustre la Figure 6.7. Les auteurs ont ainsi calculé une énergie d'activation d'environ 380 kJ.mol⁻¹ et un exposant de contrainte de 1,3.

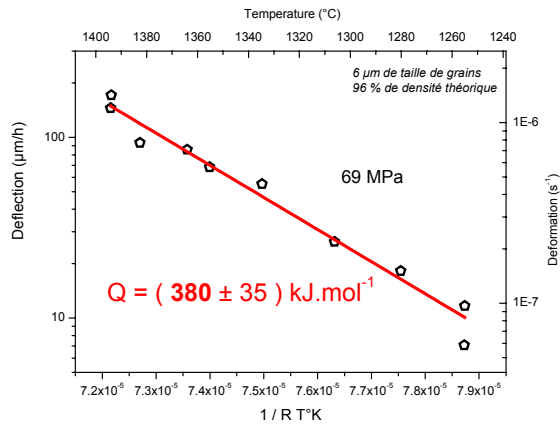
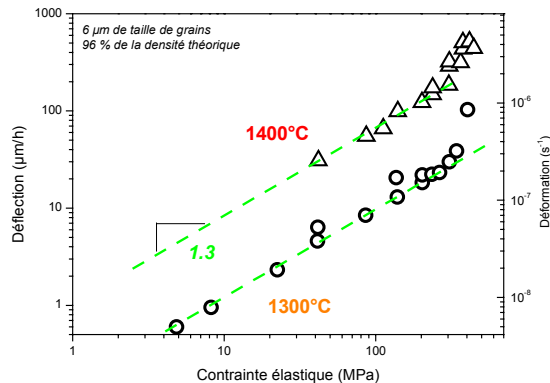


Figure 6.6 - Evolution de la vitesse de fléchissement stationnaire en fonction de la température.

(Armstrong 1962)

Figure 6.7 - Evolution de la vitesse de fléchissement stationnaire en fonction de la contrainte maximale appliquée.

(Armstrong 1962)



Cette énergie est tout à fait comparable à l'énergie d'activation de diffusion aux joints de grains des ions U^{4+} , évaluée par Knorr à 377 kJ.mol⁻¹. Pour les plus fortes contraintes, les ruptures de pentes observées sur la Figure 6.7 sont peut-être les prémices d'un deuxième régime de déformation ou d'un endommagement, voir d'un éventuel changement « dynamique » de microstructure. Canon a caractérisé le comportement de UO_2 en flexion 4 points à vitesse de déformation imposée (Canon 1971). Ce domaine d'étude correspond aux plus hautes vitesses et fortes contraintes. La contrainte d'écoulement présente alors une plus forte sensibilité à la contrainte (exposant de 4,23), et une énergie d'activation similaire (365 kJ.mol⁻¹).

Pour les valeurs de contraintes inférieures à 200 MPa, pour lesquelles les mesures effectuées apparaissent les plus cohérentes, l'ensemble des auteurs s'accordent pour exprimer la vitesse stationnaire sous la forme :

$$\dot{\epsilon} \propto e^{\frac{-380000}{RT}} \sigma^{1.3}$$

6.2 Comparaison des comportements

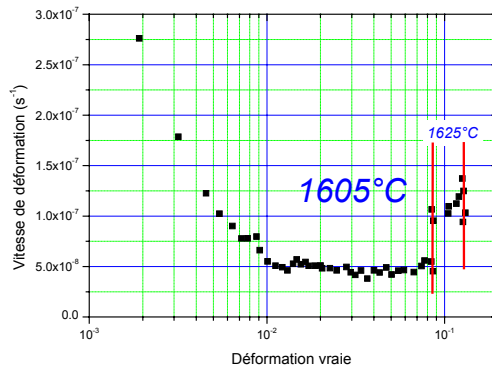


Figure 6.8 - Courbe de fluage en traction sous 7,5 MPa à 1 600°C.

(Cochran 1983)

Connaissant ces résultats obtenus pour divers modes de sollicitation, il est alors possible d'établir une comparaison afin de vérifier si le dioxyde possède un comportement dissymétrique.

Très peu de données sont disponibles concernant les essais de traction. Apparemment seul Cochran s'est intéressé au comportement de UO_2 en traction (Cochran 1983). Pour cela, il a dû mettre au point une méthode de fabrication d'éprouvettes de traction, de 4 mm de diamètre sur une longueur utile de 18 mm. Un effort a été fait pour limiter au plus les contaminations au cours de la fabrication. Le but était d'obtenir directement des éprouvettes denses (96% de la densité théorique) avec une microstructure homogène, dans une géométrie adaptée au système d'amarrage. Le dioxyde d'uranium testé présente une taille de grain de 11 μ m. Un exemple de résultat, obtenu pour une température de 1 600°C et une contrainte de 7,5 MPa, est donné sur la Figure 6.8. La courbe est caractérisée par un court fluage primaire (environ 1% de déformation), suivi d'un fluage stationnaire apparent à une vitesse de $5 \cdot 10^{-8} \text{ s}^{-1}$. La rupture est précédée d'un fluage tertiaire qui n'apparaît que pour près de 10% de déformation. Le faciès de rupture, sous ces sollicitations, semble intragranulaire. Les auteurs signalent l'existence d'une composante de déformation due à la cavitation ou à une microfissuration.

Sur la Figure 6.9 sont répertoriés les différents modèles discutés précédemment. La loi de Bohaboy sous-estime globalement les vitesses prédites par la loi LPCC utilisée au CEA, toutes deux identifiées à partir d'essais de compression. La loi obtenue en flexion par Armstrong extrapolée pour les fortes contraintes, coïncide bien avec celle établie par Canon. Toutefois, cette extension est à considérer avec précaution, car les auteurs ont utilisé des dispositifs expérimentaux (3 et 4 points) et des modes de sollicitations (fluage et vitesse imposée) différents.

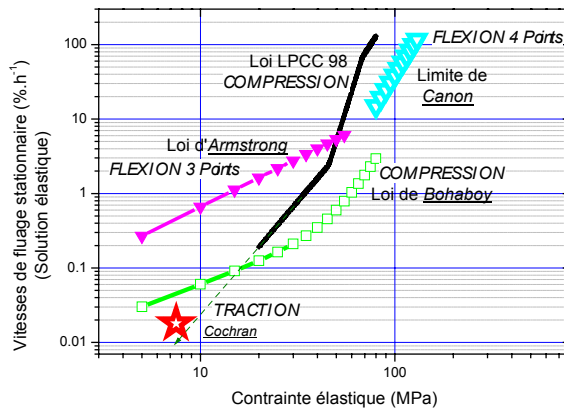


Figure 6.9 - Schéma récapitulatif des différents modèles de comportement en fluage du dioxyde d'uranium à 1 600°C.

Le fait que les auteurs n'aient pas utilisé le même procédé de fabrication, et n'aient donc pas forcément obtenu des microstructures identiques, ne favorise pas les comparaisons. D'un point de vue général, on peut toutefois conclure qu'à faible contrainte, la différence entre traction et compression reste limitée, et que l'exposant de contrainte de la loi de Norton demeure proche de l'unité. Dans ces conditions, il n'apparaît pas de dissymétrie de comportement très marquée.

6.3 Matériau utilisé pour notre étude

6.3.1 Microstructure

Notre étude a concerné le dioxyde d'uranium issu d'un lot dénommé B par le CEA. Les pastilles ont été réalisées par le procédé de fabrication classique dit DCN. La porosité, observable sur la Figure 6.10, est bimodale : elle est due pour une part à un frittage incomplet et, d'autre part, à l'ajout d'agents porogènes. La porosité totale est de l'ordre de 5,3%. Il n'y a pas d'orientation particulière des pores, ni d'effet de bord dans les pastilles. La distribution des pores est globalement homogène. Cependant il existe quelques concentrations, visibles sur la Figure 6.12, de pores de grande taille (de l'ordre de 50 μm), ou d'amas de pores. Ces amas peuvent constituer, lorsqu'ils sont sollicités en traction, des sites préférentiels d'amorçage de rupture ou de fissuration (Canon 1971, Roberts 1972).

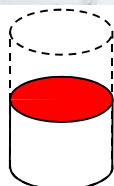
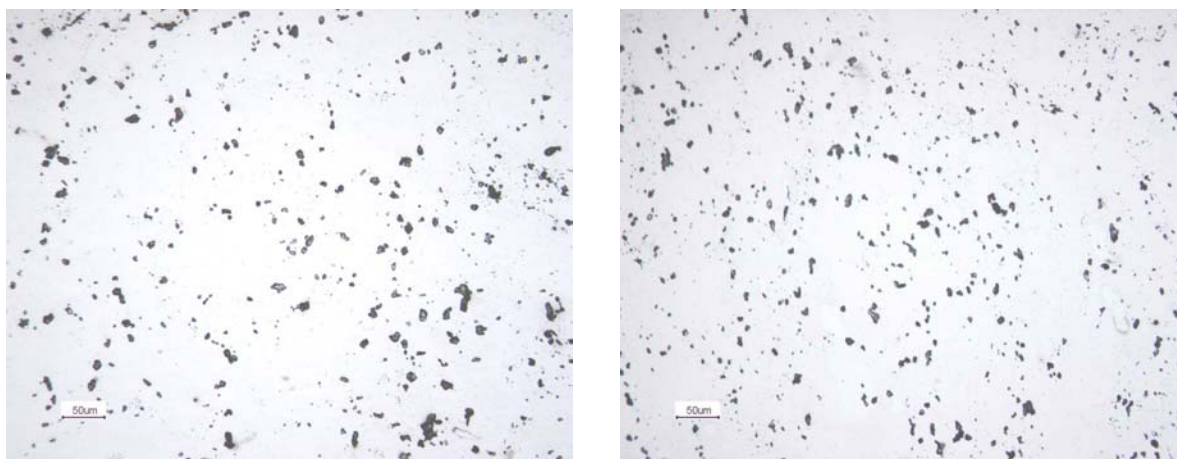


Figure 6.10 - Microstructure d'une pastille issue d'un lot B : mise en évidence de la porosité.

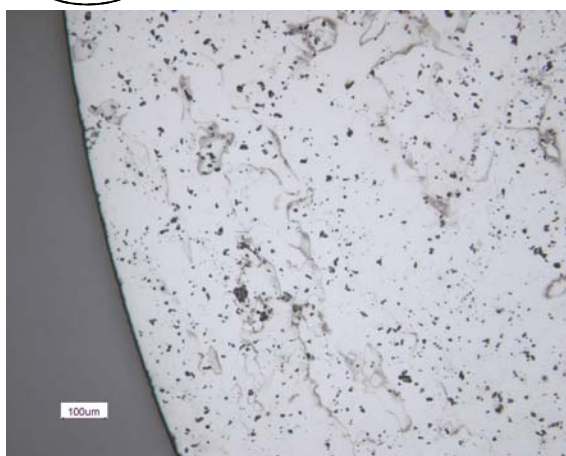
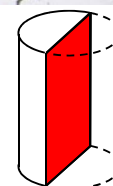


Figure 6.11 – Microstructure d'une pastille issue d'un lot B : mise en évidence de l'absence d'effets de bords.

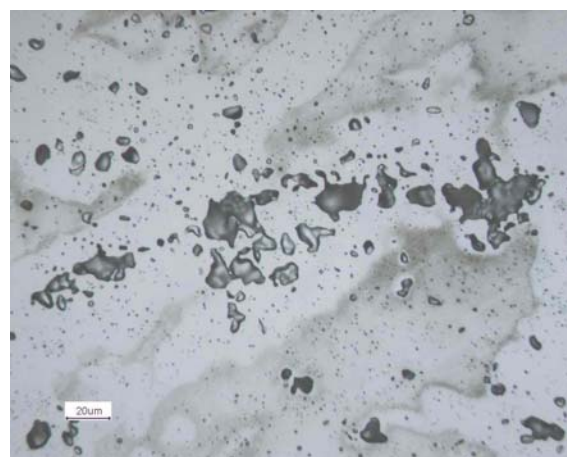
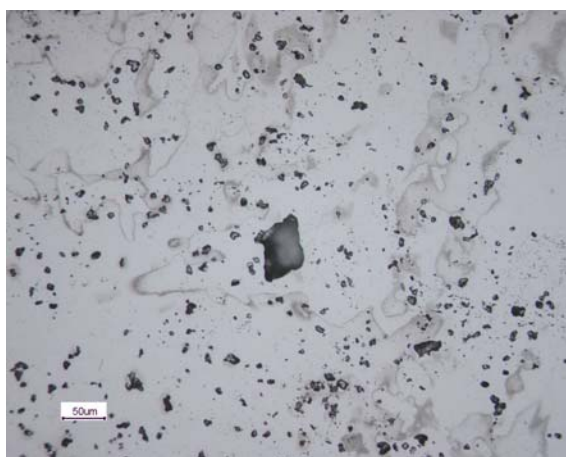


Figure 6.12 - Microstructure d'une pastille issue d'un lot B : concentrations de pores.

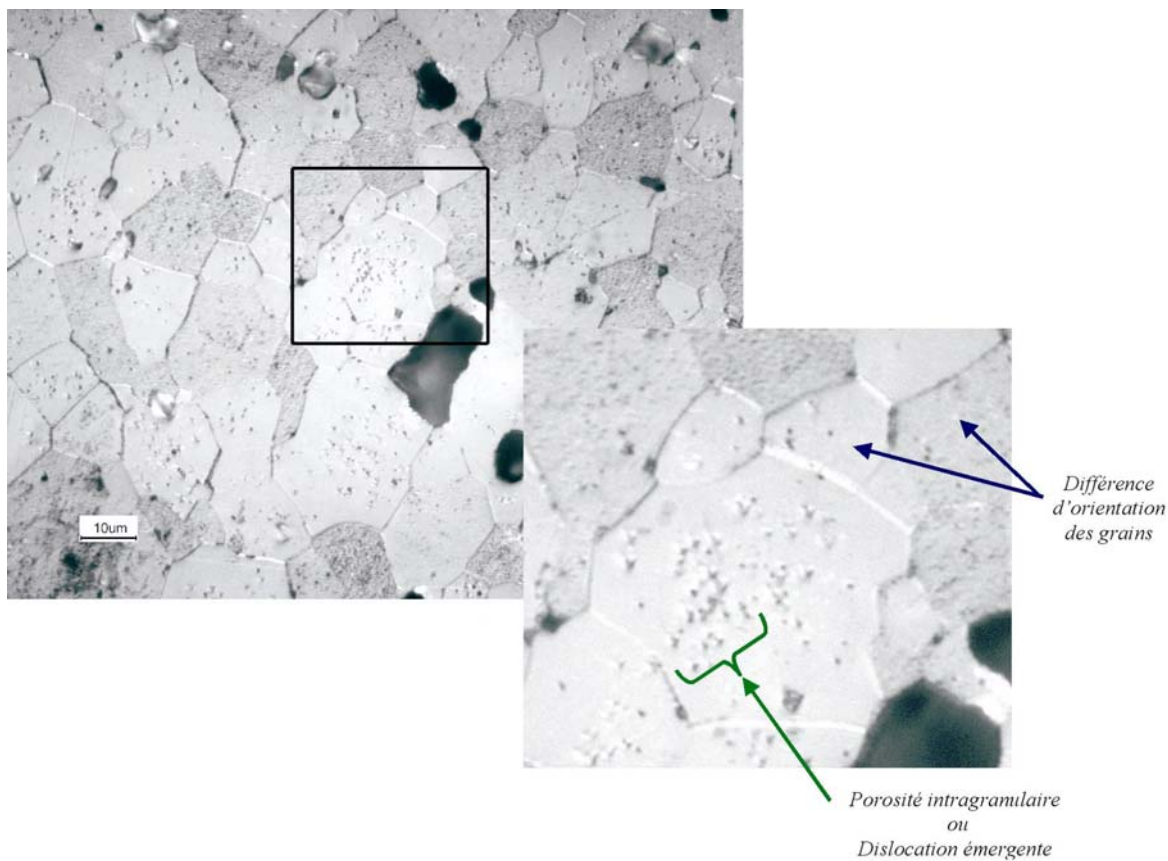


Figure 6.13 - Microstructure d'une pastille issue d'un lot B : mise en évidence par une attaque chimique d'une porosité intragranulaire.

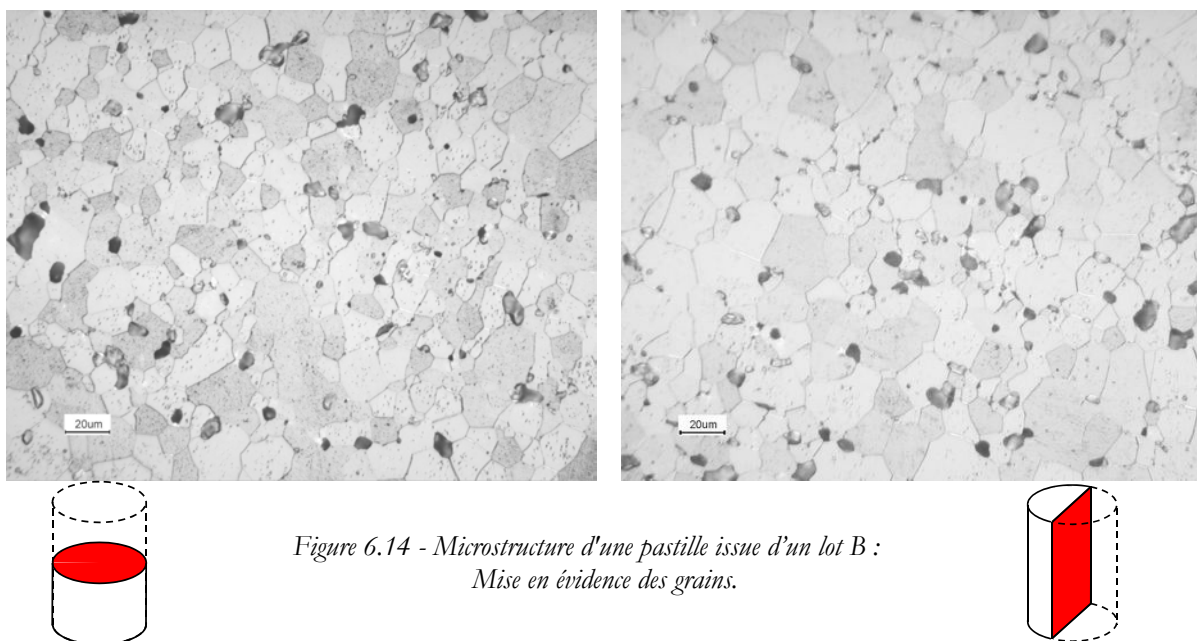


Figure 6.14 - Microstructure d'une pastille issue d'un lot B : Mise en évidence des grains.

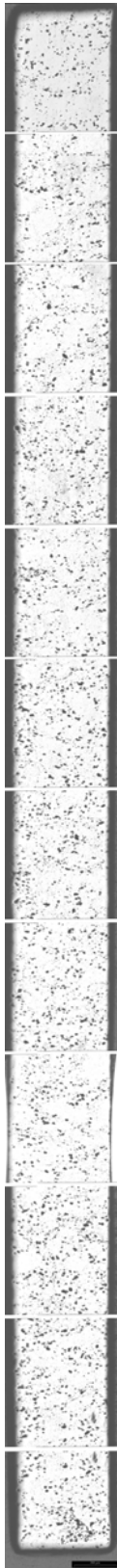


Figure 6.15 - Surface usinée d'une éprouvette.

Une attaque chimique oxydante (H_2O , H_2O_2 , H_2SO_4) permet de révéler les joints de grains, comme illustré sur la Figure 6.13. Ce bain met en exergue une porosité intragranulaire très fine. Les figures d'attaque dépendent de l'orientation du grain. Chaque surface de grain subit une attaque chimique dépendante de son orientation cristallographique, en raison de la structure de l'oxyde faite d'empilements d'anions et de cations. La céramique présente des surfaces « polaires », constituées de plans chargés. Ces surfaces sont nettement moins stables et donc plus sensibles à l'attaque chimique (Dherbey 2000).

Cette attaque n'a pas mis en évidence d'orientation privilégiée des grains, ni d'effet de bord. Par contre, comme on peut le remarquer sur la Figure 6.14, la distribution en taille n'est pas homogène. Les grains sont beaucoup plus petits lorsqu'ils sont proches de pores intergranulaires. Ces derniers ont constitué des points d'ancrage des joints de grains lors du frittage et ont empêché la croissance des grains. La taille moyenne de grain a été estimée à $14\ \mu m$. Enfin aucune phase intergranulaire n'a pu être observée dans les combustibles standards (Perez 1993).

6.3.2 Découpes des éprouvettes

Afin d'obtenir des fléchissements significatifs, il faut choisir une éprouvette la plus fine possible. Par contre, vu les faibles dimensions d'éprouvettes, les charges appliquées en fluage sont très basses, environ 2 N. L'épaisseur de l'échantillon est alors primordiale, il faut faire un compromis entre confort de régulation en charge, et déformations associées suffisamment élevées. C'est pour cela que deux géométries d'éprouvette sont utilisées, avec $500\ \mu m$ ou $1\ mm$ d'épaisseur.

Pour obtenir les fines lamelles que constituent nos éprouvettes de flexion, les pastilles ont été découpées à l'aide d'une scie à fil diamanté dans le sens de la hauteur. Les vitesses de défilement du fil et d'avancement du front de coupe sont des paramètres importants pour la maîtrise de l'épaisseur de l'éprouvette. Un exemple de coupe réalisée est donné sur la Figure 6.15. Cette méthode d'usinage permet d'obtenir des tranches d'épaisseur constante, comme le prouvent des mesures d'épaisseur réalisées par microscopie optique (Figure 6.16).

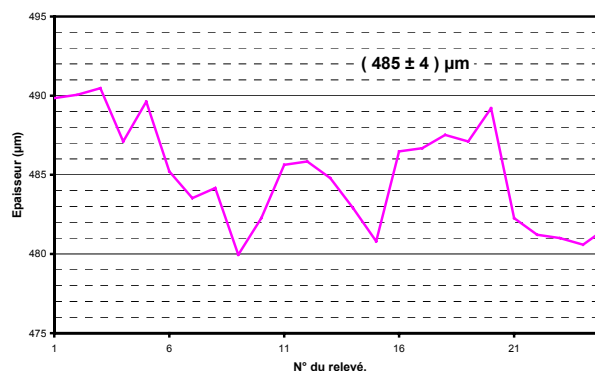


Figure 6.16 - Variations de l'épaisseur d'une éprouvette sur sa longueur.

La découpe permet donc d'obtenir des faces parallèles avec une tolérance d'environ 5 μm , condition nécessaire pour obtenir des résultats corrects. Une mesure des dimensions de chacune des éprouvettes a été systématiquement effectuée à l'aide d'un palmer.

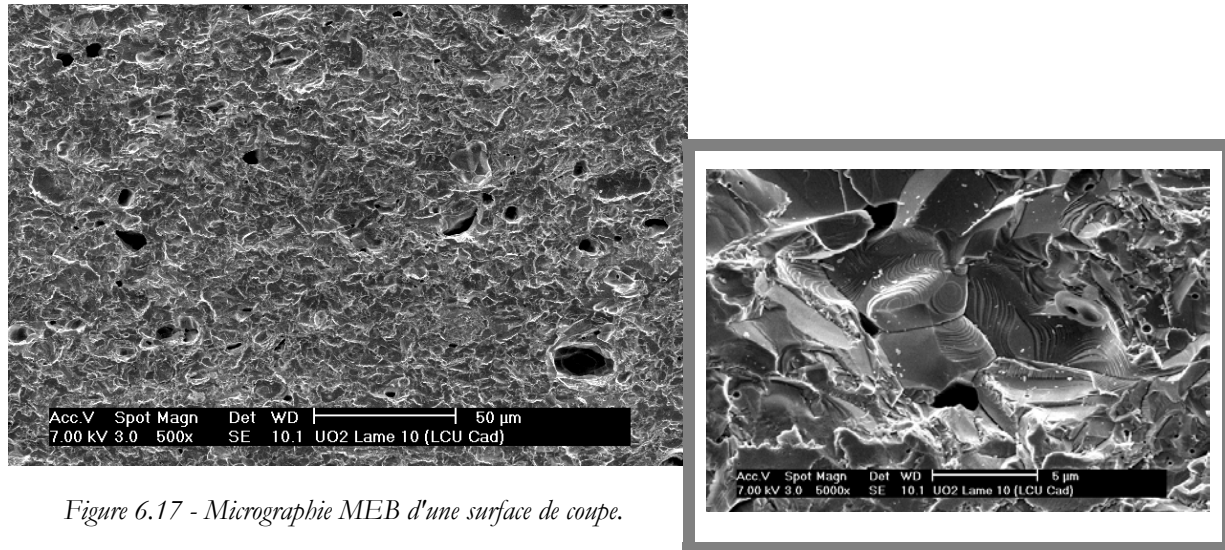


Figure 6.17 - Micrographie MEB d'une surface de coupe.

Une observation des surfaces usinées (un exemple est fourni par la Figure 6.17) prouve que la découpe ne génère aucun endommagement significatif.

Une analyse des surfaces usinées en microscopie optique révèle toutefois quelques fissures parallèles à la surface de coupe : un exemple est donné par la Figure 6.18. L'orientation longitudinale de ces défauts, parallèle aux contraintes, ne les rend pas pénalisants pour nos essais. Par ailleurs, ces défauts de coupe sont de plus petite taille que les pores naturellement présents dans l'oxyde, ce qui conforte leur rôle négligeable dans la réponse de nos éprouvettes.

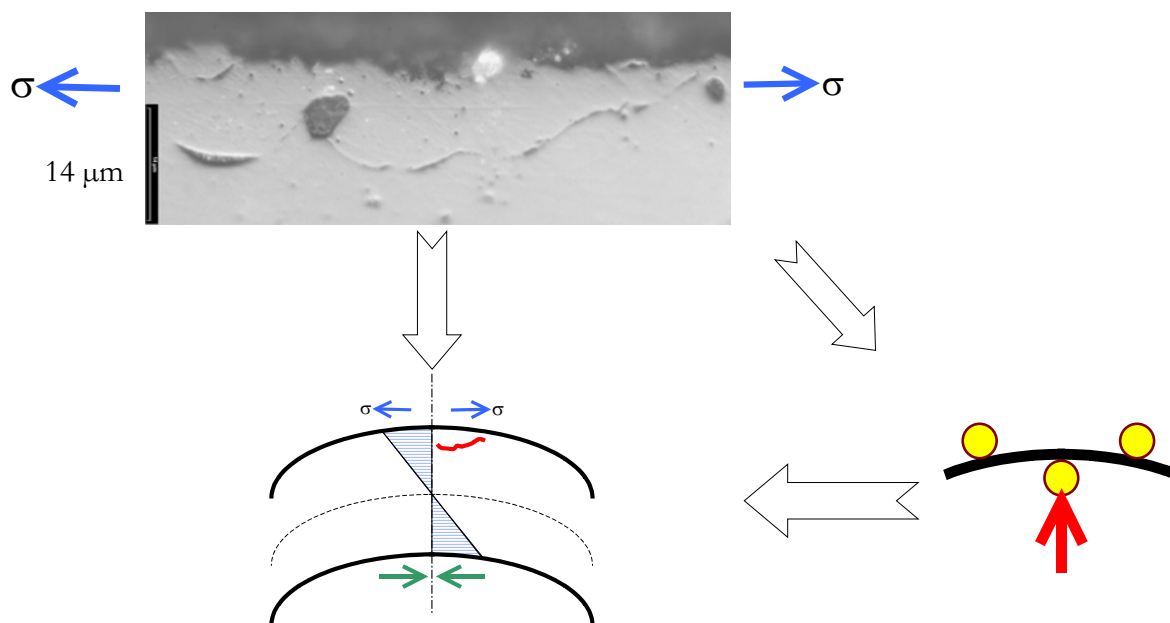


Figure 6.18 – Profil d'une éprouvette : mise en évidence de défauts de découpe.

Partant de ces observations, il ne nous a pas paru nécessaire de polir les échantillons, d'autant plus que le but de notre étude est d'étudier le fluage et non la rupture. Un auteur (Evans 1969a) nous conforte d'ailleurs dans cette idée, puisqu'il n'a pas mis en évidence d'influence de l'état de surface sur le comportement à rupture (cf. Figure 6.2) de l'oxyde.

Enfin, la faible épaisseur de nos éprouvettes représente de l'ordre de 40 fois la taille de grain du matériau, ce qui garantit la représentativité microstructurale de nos échantillons.

6.4 Interprétation des résultats

Avant de continuer la description de nos résultats, il faut signaler que par la suite, les déformations et contraintes utilisées sont les solutions données par les lois de l'élasticité pour une poutre en flexion. En effet au chapitre précédent nous avons vu que l'essai de flexion trois points est bien décrit en élasticité. Des relations simples entre le chargement, la flèche et les contraintes, les déformations existent. Cet essai implique un effet de structure, il y a un gradient linéaire de contraintes dans l'épaisseur de la poutre.

Par contre, lors d'un essai de fluage, la distribution des contraintes change pour un matériau non Newtonien. Il y a un transitoire de structure où les contraintes vont diminuer jusqu'à atteindre un état stationnaire. Lorsque le matériau est symétrique, l'axe neutre ne se déplace pas. Dans ce cas simple, il est possible de considérer la solution élastique pour obtenir les paramètres n et Q d'une loi Norton classique. Par contre, si le matériau est dissymétrique, la redistribution est encore plus complexe ; il y a même un déplacement de l'axe neutre vers les états initialement de compression. Dans ce cas, il n'y a pas de solution analytique. Il faut alors utiliser les outils de simulation numérique pour avoir une interprétation correcte de l'essai de flexion.

Ici nous nous plaçons dans le cas simple d'un matériau symétrique, comme nous l'avons noté sur la Figure 6.9. Les vitesses dites stationnaires sont supposées correspondre à un état où le transitoire de structure est dépassé et où le matériau se déforme effectivement dans un état stationnaire.

Dans un premier temps, il a fallu cerner le domaine de sollicitation en température et contrainte. Ensuite, afin de comparer nos essais avec la littérature et de valider les mesures, nous avons caractérisé le fluage stationnaire du combustible. Pour cela des essais de fluage ont été menés à différentes contraintes et températures. Cela nous permet de calculer les paramètres Q et n d'une loi de Norton classique. Enfin des essais plus complexes ont permis de valider la loi obtenue.

6.5 Présélection des températures d'essai.

Dans un premier temps, il s'est agit de cerner le domaine de sollicitations en température. La littérature fournit quelques indications. Les cartes d'Ashby indiquent qu'il n'y a pas de fluage du combustible en dessous de 1 000°C (Frost 1982). De plus, d'autres auteurs (Tottle 1965) et (Evans 1969a, Tottle, 1965 #188) n'ont obtenu des fléchissements significatifs qu'au-delà de 1 300°C.

Pour confirmer ces températures, quelques barreaux ont été soumis à un essai de fluage anisotherme. Les éprouvettes sont maintenues sous chargement constant entre 800 et 1 500°C, la température croissant très lentement à 40°C/h. Cette vitesse lente a été choisie pour pouvoir assimiler cette rampe à une succession d'états quasi-statiques. Un exemple de courbe brute obtenue sous 30 MPa, donné sur la Figure 6.19 (a), met en évidence une dérive du fléchissement due notamment aux dilatations thermiques. La dérive extensométrique pouvant être considérée comme linéaire en fonction de la température et extrapolable au-delà de 1 250°C, la soustraction de cette composante de dérive thermique permet d'accéder à une courbe de fléchissement réelle représentée sur la droite de la Figure 6.19 (b).

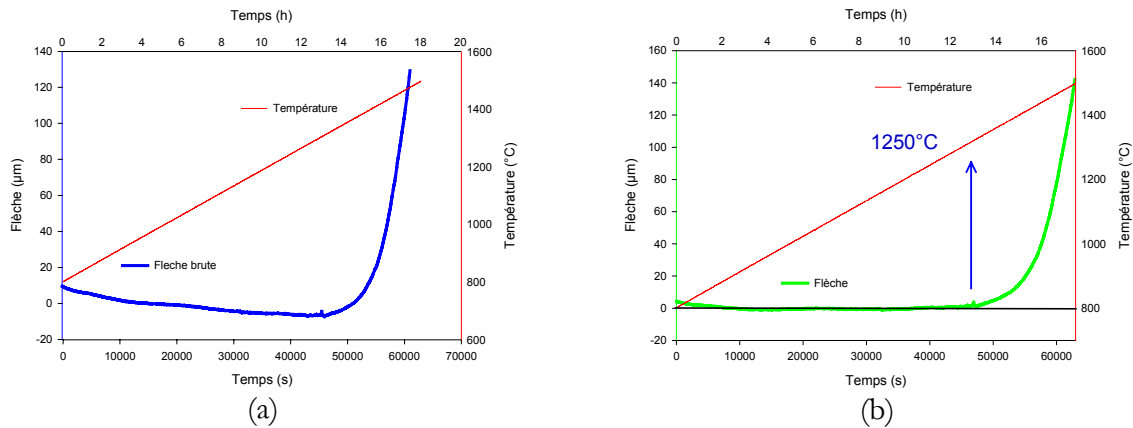


Figure 6.19 - Courbes brute et corrigée de l'essai de fluage anisotherme sous 30 MPa.

Le fléchissement s'accélère logiquement lorsque la température augmente. Ce type d'essai a permis de cibler les températures auxquelles il est intéressant de réaliser nos essais de fluage isotherme : la Figure 6.20 révèle que, pour nos conditions d'essai, un fluage significatif ne semble apparaître qu'au-delà de 1 250°C et ce quelle que soit la contrainte appliquée.

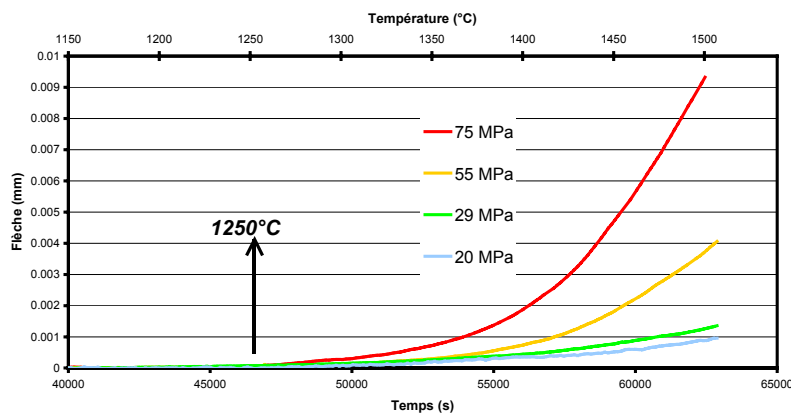


Figure 6.20 - Evolution de la déformation au cours d'essais de fluage anisotherme pour différentes contraintes.

6.6 Comportement en flexion

Les résultats obtenus lors des essais anisothermes ont été utilisés pour déterminer notre plan d'expérience ultérieur. La température de 1 350°C a été choisie pour évaluer l'influence de la contrainte sur la vitesse de fluage. Par ailleurs, des essais ont également été réalisés à des températures différentes afin de quantifier le rôle joué par celle-ci.

6.6.1 Ecrouissage et élasticité à 1 350°C

Tout d'abord, un essai d'écrouissage a été effectué à une vitesse constante de 5 %.h⁻¹, soit une vitesse de fléchissement d'environ 30 μm.min⁻¹. La courbe contrainte-déformation ainsi obtenue est présentée sur la Figure 6.21.

Le matériau rompt pour une contrainte de 170 MPa et présente une contrainte d'écoulement d'environ 135 MPa. Ces deux valeurs sont en accord avec les mesures effectuées par d'autres auteurs (Evans 1969a) pour des échantillons ayant une taille de grain de 8 μm. En tenant compte de ce résultat, la contrainte appliquée durant nos tests de fluage sera limitée à 100 MPa, soit environ les trois-quarts de la contrainte d'écoulement. La déformation à rupture reste inférieure à

0,9% (flèche de 270 μm). Cette faible déformation s'explique par le fait que la température de 1 350°C est proche de la transition de comportement mécanique du matériau, et que celui-ci n'est alors que peu déformable. Enfin cet essai ne met pas en évidence de pic de contrainte comme ceux constatés lors d'essai de compression.

Figure 6.21 - Comportement du dioxyde d'uranium à 1 350°C sous chargement monotone.

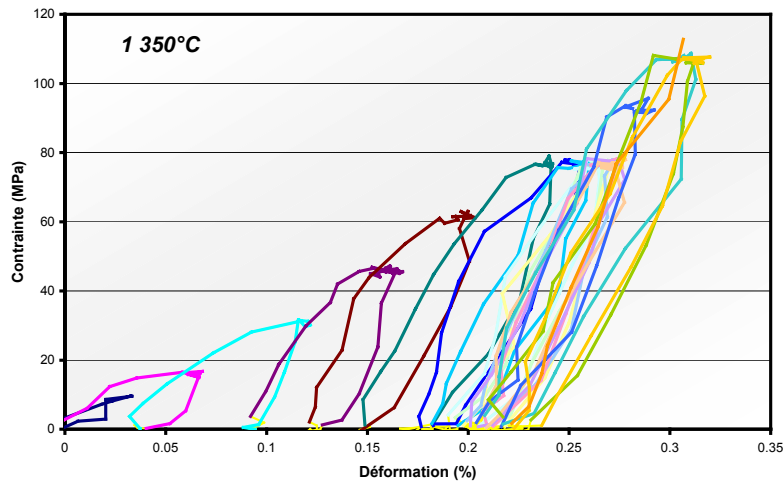
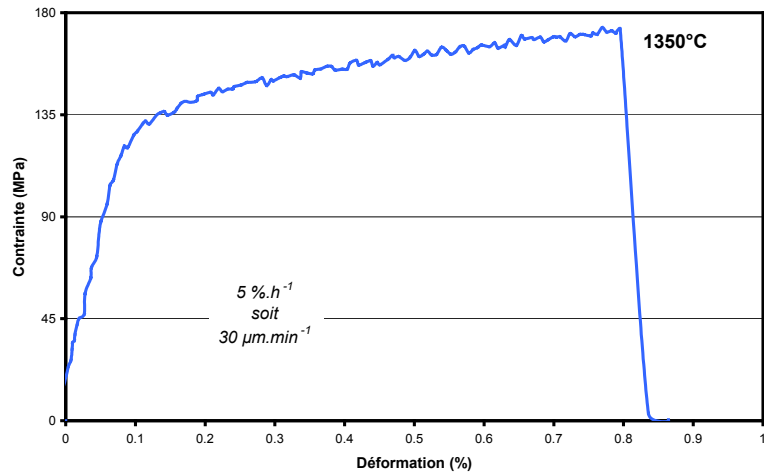
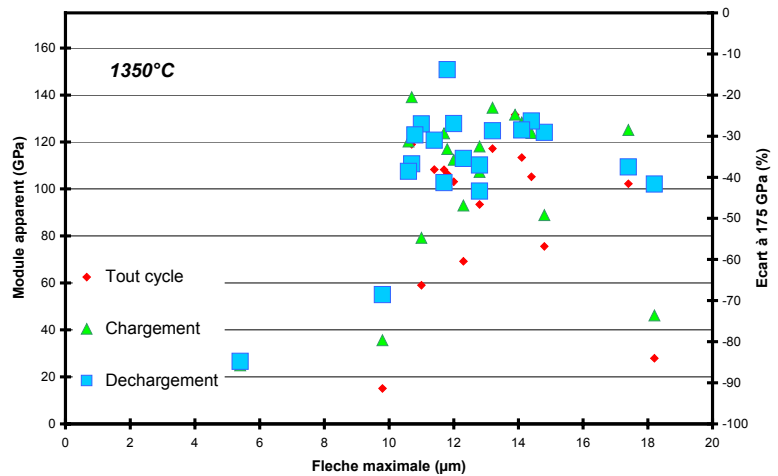


Figure 6.22 - Comportement du dioxyde d'uranium à 1 350°C sous chargement cyclique à charge maximale croissante.

Une éprouvette a été soumise à plusieurs cycles de chargement-déchargement à charge maximale croissante, schématisés sur la Figure 6.22. Cette démarche est similaire à celle que nous avons utilisée pour caractériser l'élasticité d'une éprouvette XC 38 TS, dans le cinquième chapitre. Au cours de cet essai, la déformation maximale atteinte augmente avec le nombre de cycles car le matériau flue en cours d'essai. Pour chaque cycle, les modules d'élasticité apparents, à la fin de la mise en contrainte et au début du déchargement, sont résumés sur la Figure 6.23 en fonction de la flèche maximale atteinte. La valeur de module considérée par le CEA comme référence est de 175 GPa à 1 350°C. Notre dispositif sous estime le module d'élasticité du matériau, d'environ 30% pour les déformations les plus élevées. Ceci est dû au fait que, pour les faibles flèches maximales mesurées, les incertitudes liées au pied de courbe prennent une grande importance (cf. Chapitre précédent).

Globalement, on peut conclure que notre dispositif permet de mesurer des caractéristiques mécaniques du dioxyde d'uranium en accord avec celles fournies par la littérature.

Figure 6.23 – Module d'élasticité du dioxyde d'uranium à 1 350°C.



6.6.2 Fluage stationnaire à 1 350°C, influence de la contrainte

L'ensemble des essais de fluage menés sous charge constante à 1 350°C est récapitulé sur la Figure 6.24. L'application d'une contrainte de 105 MPa conduit rapidement à la casse de l'éprouvette par un phénomène de rupture différée. Aucun autre échantillon n'a été amené à rupture en fluage.

Evidemment, plus la charge est élevée, plus la céramique se déforme rapidement. Les vitesses de déformation résultantes sont décrites sur la Figure 6.25. Il faut noter que la réponse sous 90 MPa présente un stade de fluage primaire apparent très important, l'établissement du fluage stationnaire intervenant seulement après presque 2,5% de déformation. Pour les contraintes plus faibles, à cette température, le dioxyde d'uranium supporte des déformations élevées pour une céramique, plus de 2%. Le fluage primaire pour ces trois essais est nettement moins prononcé et concerne moins de 0,25% de déformation. Excepté l'éprouvette testée à 105 MPa, il n'a jamais été mis en évidence de fluage tertiaire, comme l'avait également noté (Armstrong 1962).

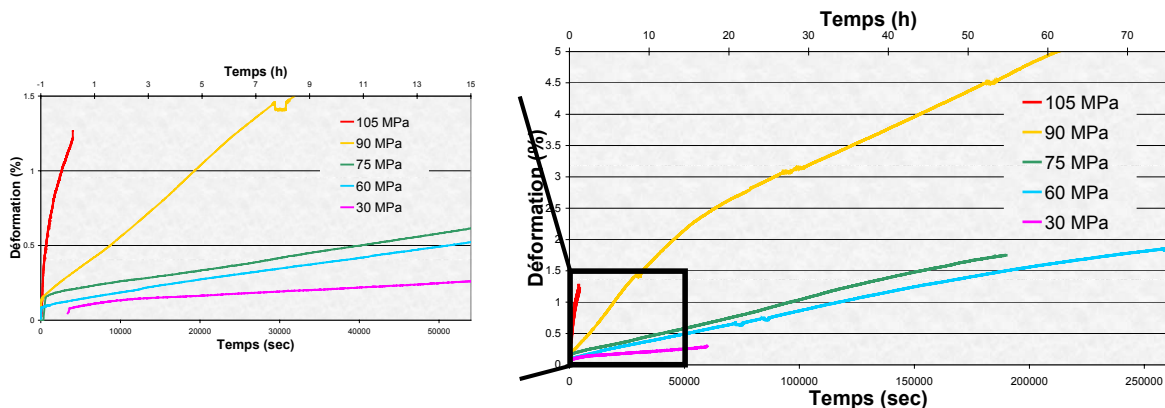


Figure 6.24 – Courbes de fluage du dioxyde d'uranium à 1 350°C en flexion 3 points pour plusieurs niveaux de contraintes.

Les différentes vitesses de fluage stationnaire apparent, calculées à partir de la dérivée des courbes de déformation, sont reportées sur la Figure 6.25 et dans la Figure 6.26 dans un espace log-log. Ici on considère que les courbes de fluage sont caractéristiques d'une déformation stationnaire globale de l'éprouvette : régimes stationnaires de structure et de matériau sont supposés atteints.

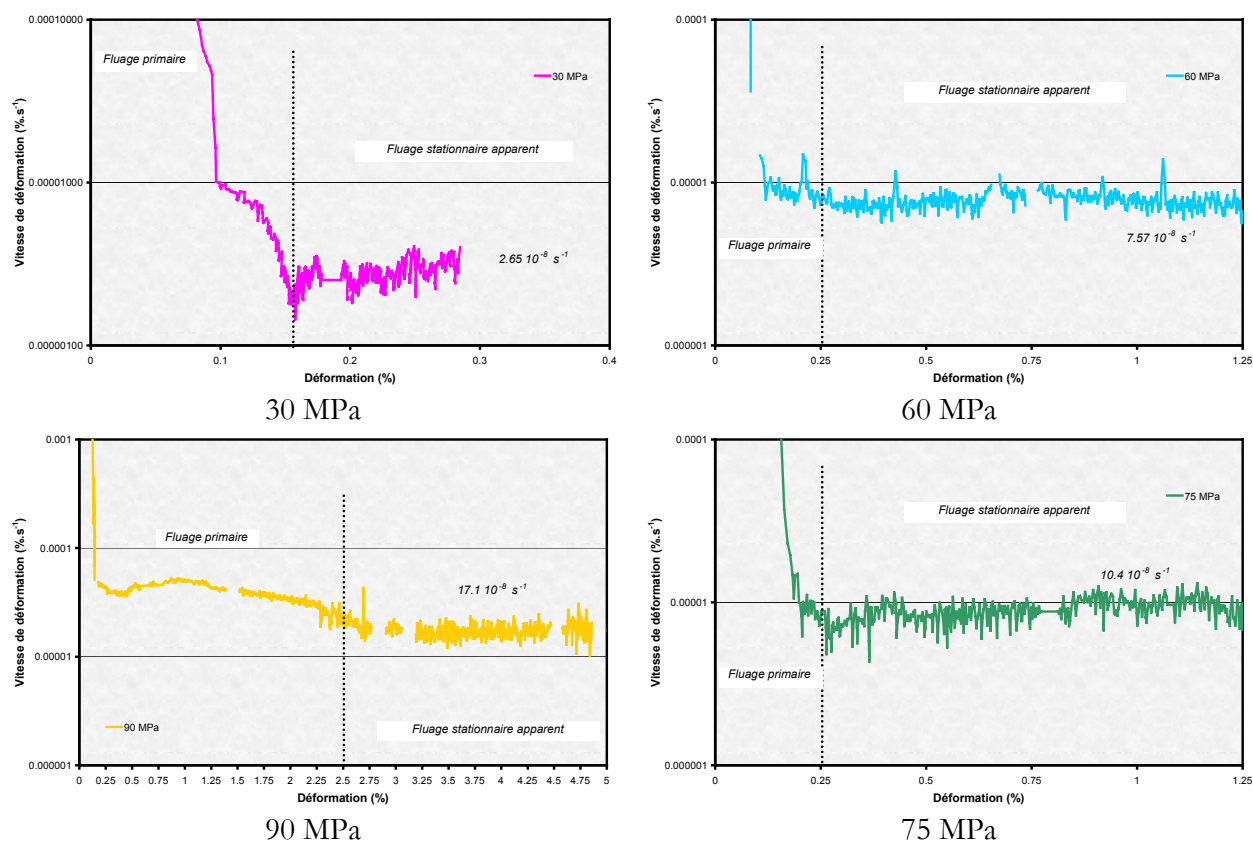


Figure 6.25 - Vitesses de déformation en fonction de la déformation lors d'essais de fluage sous différentes contraintes à 1350°C.

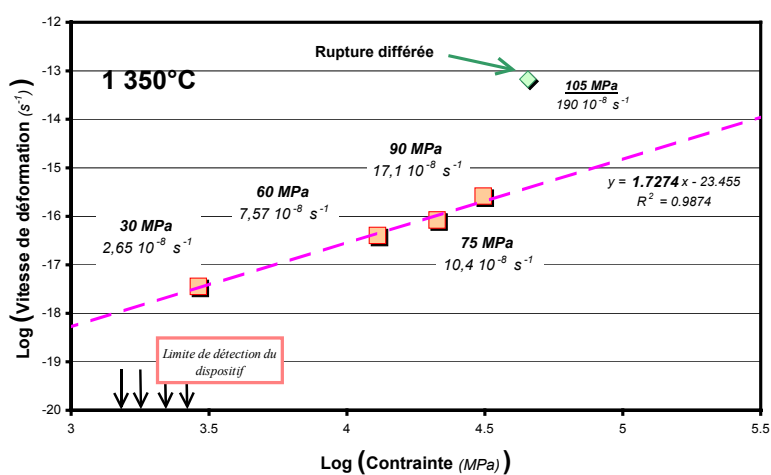


Figure 6.26 - Influence de la contrainte sur la vitesse de fluage stationnaire de UO_2 à 1350°C en flexion 3 points.

L'exposant de contrainte est faible et vaut 1,73. L'essai sous 90 MPa confirme cette valeur, bien qu'il présente un fluage primaire singulier. Ce fluage primaire plus important peut être dû à un gauchissement ou à une mise en place atypique de l'éprouvette.

Dans les conditions de contrainte et de température pour lesquelles ils ont été menés, ces essais n'ont pas mis en évidence de deuxième régime de déformation. L'exposant de contrainte calculé est en accord avec la valeur de 1,3 fournie par les rares auteurs (Armstrong 1962) ayant travaillé dans des conditions de sollicitation analogues.

6.6.3 Fluage stationnaire sous 75 MPa, influence de la température

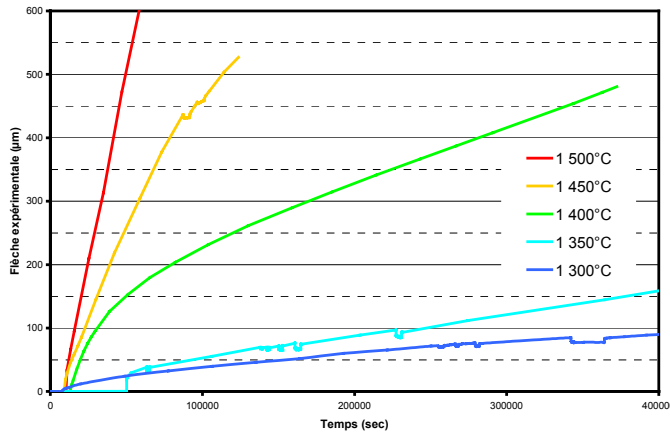


Figure 6.27 - Courbes de fluage du dioxyde d'uranium sous 75 MPa en flexion trois points à différentes températures.

Nous avons réalisé plusieurs essais de fluage sous 75 MPa, à différentes températures allant de 1 300 à 1 500°C. Ces cinq essais sont représentés sur la Figure 6.27, où est tracée l'évolution temporelle du fléchissement. Sur la Figure 6.29, où la vitesse de déformation est décrite en fonction de la déformation des éprouvettes, on peut vérifier que le fluage est thermiquement activé. Pour ces essais, le fluage primaire est encore peu marqué, et correspond à moins de 0,5% de déformation. Pour cette série, il y a aussi un essai atypique : à 1 400°C, le fluage primaire prend une beaucoup plus grande proportion, l'état stationnaire n'est atteint que pour une déformation de 1,5%.

Il faut signaler que le tracé des vitesses de déformation en fluage en fonction du temps d'essai ne montre pas de corrélation évidente entre ces deux variables. Rien n'indique donc que le régime primaire est d'origine viscoélastique et gouverné par une constante de temps dépendant de la température.

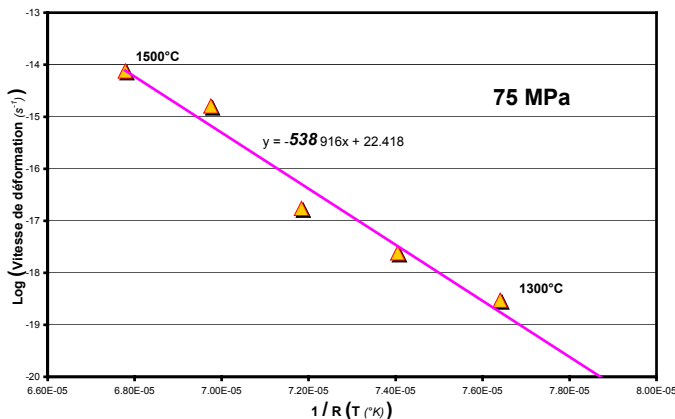


Figure 6.28 – Estimation de l'énergie d'activation du fluage en flexion de UO_2 , sous 75 MPa.

La Figure 6.28 représente l'évolution des vitesses de déformation stationnaires en fonction de la température, pour cet ensemble d'essais menés sous 75 MPa : une énergie d'activation de $(540 \pm 56) \text{ kJ.mol}^{-1}$ est ainsi estimée pour l'ensemble des essais. Cette valeur correspond à l'énergie d'autodiffusion de U^{4+} dans le dioxyde d'uranium, $Q_{\text{vol}} = 544 \text{ kJ.mol}^{-1}$ d'après (Knorr 1989). Il faut signaler que (Armstrong 1962) annonce une énergie plus faible, proche de l'énergie de diffusion aux joints de grains, 380 kJ.mol^{-1} .

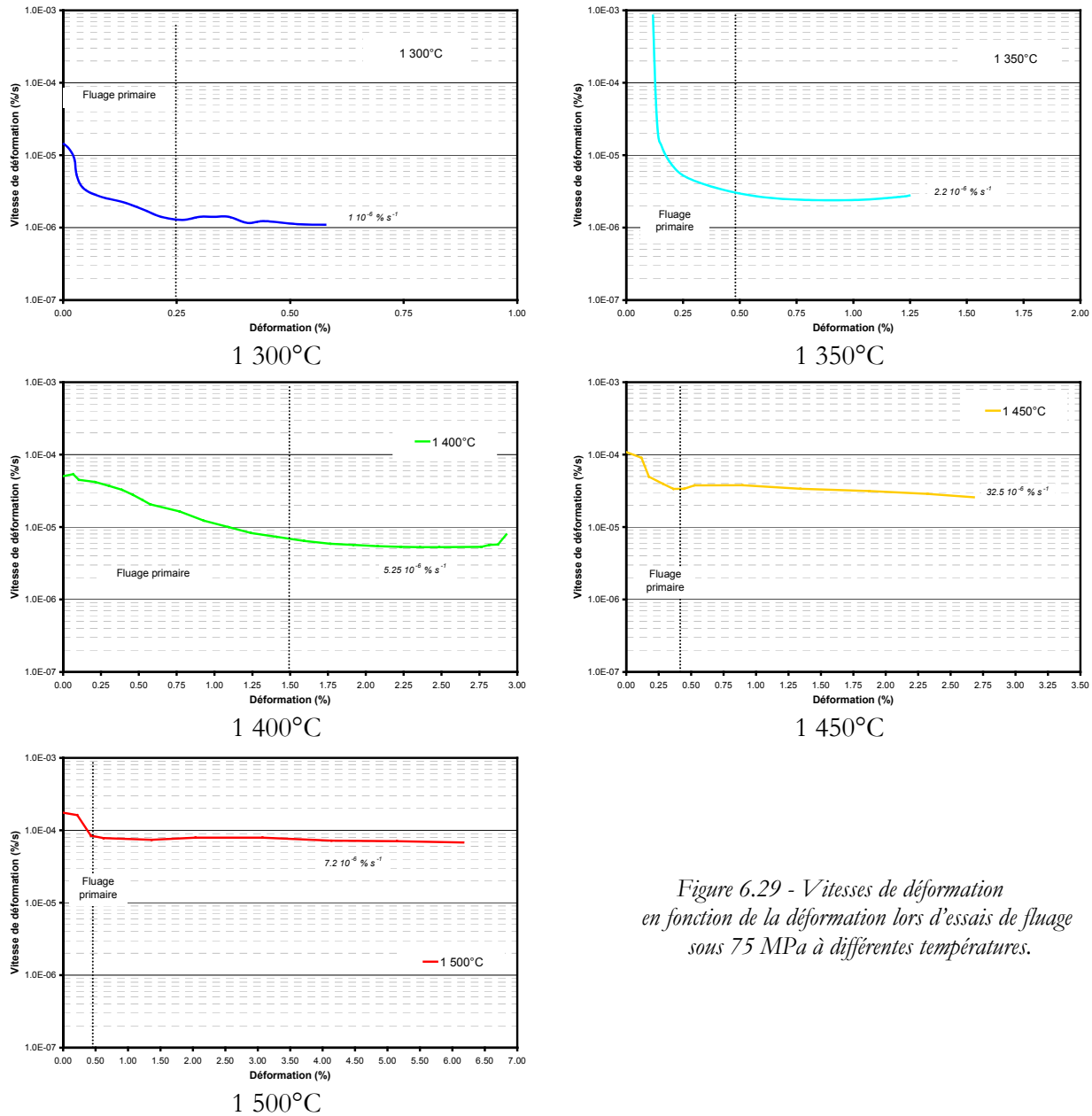


Figure 6.29 - Vitesses de déformation en fonction de la déformation lors d'essais de fluage sous 75 MPa à différentes températures.

Conclusions partielles :

A l'issue de ces essais, nous avons caractérisé le fluage stationnaire apparent du dioxyde d'uranium en flexion en décrivant l'influence de la contrainte par une loi puissance et celle de la température par un terme d'Arrhénius. L'exposant est faible et comparable aux études précédentes. L'énergie d'activation que nous avons évaluée ici, semble être caractéristique de la diffusion en volume dans l'oxyde. En résumé, la vitesse de déformation stationnaire suit une loi de la forme :

$$\dot{\epsilon} \propto \sigma^{1.73} e^{-\frac{540 \text{ kJ.mol}^{-1}}{RT}}$$

Nous allons dans la suite vérifier la pertinence de cette loi en l'appliquant à d'autres types d'essai. Enfin il faut signaler que les essais à différentes contraintes présentés sur la Figure 6.26 ou à différentes températures sur la Figure 6.28, n'ont pas mis en évidence deux régimes de déformation.

6.6.4 Vérification de l'exposant de contrainte, exploitation d'essai de relaxation

Nous avons réalisé quelques essais de relaxation, notamment à 1 500°C (Figure 6.30). En fait, il s'agit plus exactement d'un essai dans lesquels se succèdent des phases sous charge constante et de relaxation à flèche constante, sur la partie (a). La superposition des courbes de relaxation de la charge, sur la partie (b) illustre la reproductibilité de ces courbes.

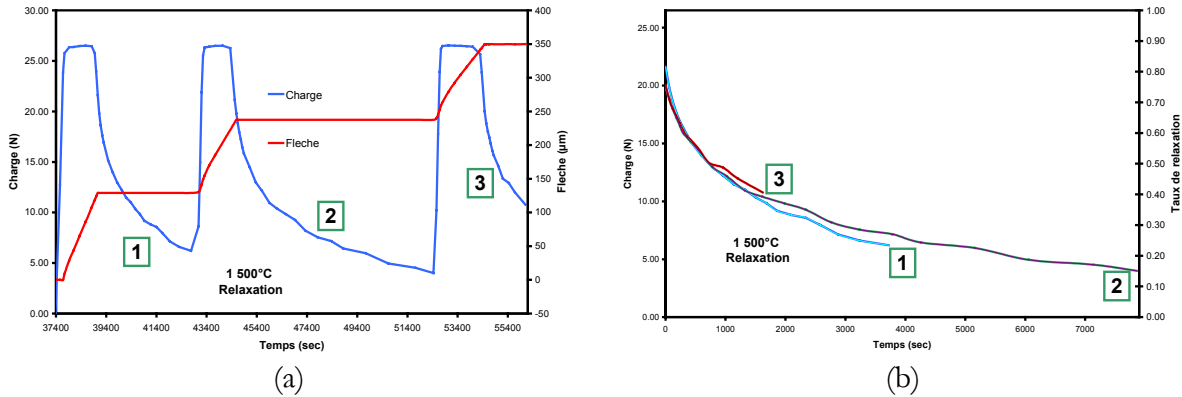


Figure 6.30 - Relaxation du dioxyde d'uranium en flexion trois points à 1 500°C.

Lors d'un essai de relaxation, la déformation totale est maintenue constante et la déformation élastique se transforme progressivement en déformation plastique suivant les relations :

$$\begin{aligned}\varepsilon_{Tot} &= \varepsilon_{Elastique} + \varepsilon_{Plastique} = Cte \\ \dot{\varepsilon}_{Tot} &= \dot{\varepsilon}_{Elastique} + \dot{\varepsilon}_{Plastique} = 0 \\ \dot{\varepsilon}_{Plastique} &= -\frac{\dot{\sigma}}{E}\end{aligned}$$

Si l'on suppose que le matériau suit une loi de Norton, ce qui revient à négliger le fluage primaire, alors on peut écrire :

$$\begin{aligned}\dot{\sigma} &\propto \dot{\varepsilon} \propto \sigma^n \\ Ln(\dot{\sigma}) &\propto n Ln(\sigma)\end{aligned}$$

La Figure 6.31 représente le tracé du logarithme de la dérivée temporelle de la contrainte en fonction du logarithme de la contrainte. Dans cet espace, on peut simplement déterminer l'exposant n par régression linéaire ; on obtient alors un excellent accord avec la valeur trouvée précédemment, 1,76 comparé à 1,73. Il faut remarquer que pour les faibles taux de relaxation (i.e. les fortes contraintes) en début de relaxation, l'écart est plus important. En fait cela provient sans doute des incertitudes expérimentales. En effet, les premiers stades de relaxation correspondent expérimentalement au court laps de temps nécessaire pour basculer d'une régulation en charge à un asservissement sur l'extensomètre laser sur le dispositif expérimental. Dans cette période, l'évolution de la charge correspond donc pour une part à la relaxation du dioxyde et d'autre part à celle de la ligne de charge, non encore compensée par l'asservissement.

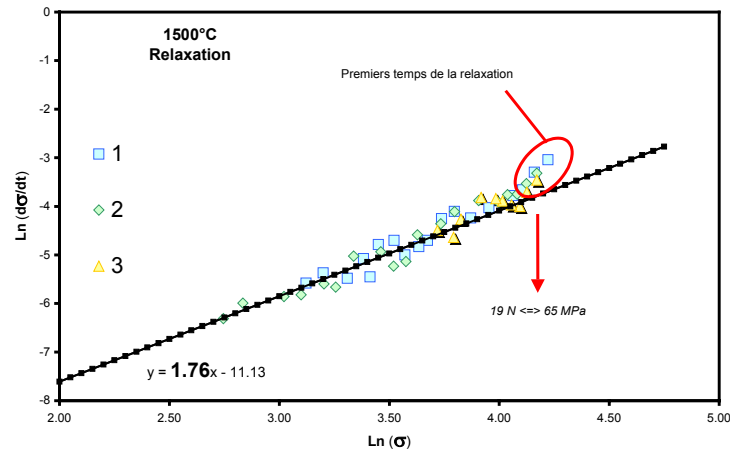


Figure 6.31 - Estimation de l'exposant de contrainte à l'aide d'essai de relaxation.

Cet essai de relaxation nous a donc permis de vérifier l'exposant de contrainte que nous avons calculé à l'aide d'essais de fluage. Il nous reste à valider l'influence de la température, ce qui revient à vérifier la valeur de l'énergie d'activation. Pour cela nous allons utiliser les essais de fluage anisotherme.

6.6.5 Vérification de l'énergie d'activation, retour sur les essais anisothermes

On fait l'hypothèse que les essais de fluage anisotherme sont assimilables à une succession d'états quasi-statiques stationnaires de fluage et qu'un seul mécanisme de fluage intervient dans le domaine exploré. En faisant l'hypothèse que la vitesse de déformation, i.e. la vitesse de fluage stationnaire, suit la loi proposée précédemment : $\dot{\epsilon}$ est proportionnelle à un terme d'Arrhénius dans lequel T est la température absolue et R la constante des gaz parfaits, et à la contrainte σ élevée à la puissance n . Alors il est possible de calculer la valeur de l'énergie d'activation Q du fluage décrivant la courbe de fléchissement enregistrée durant notre essai. En effet à chaque instant, à chaque température, il est possible d'écrire :

$$\dot{\epsilon} = \frac{\delta \epsilon}{\delta t} \propto e^{\frac{-Q}{RT}} \sigma^n$$

$$\dot{\epsilon} / \sigma^n \propto e^{\frac{-Q}{RT}}$$

Il faut alors normer la vitesse de déformation par la contrainte élevée à la puissance n (1,73) pour les différents essais. Le logarithme de cette valeur, tracé en fonction l'inverse de RT , permet d'estimer l'énergie d'activation du fluage Q par simple régression linéaire. A partir des données illustrées par la Figure 6.32, qui reflète cette démarche, on calcule une énergie d'activation de 530 kJ.mol^{-1} , qui conforte la valeur annoncée à l'issue des essais de fluage.

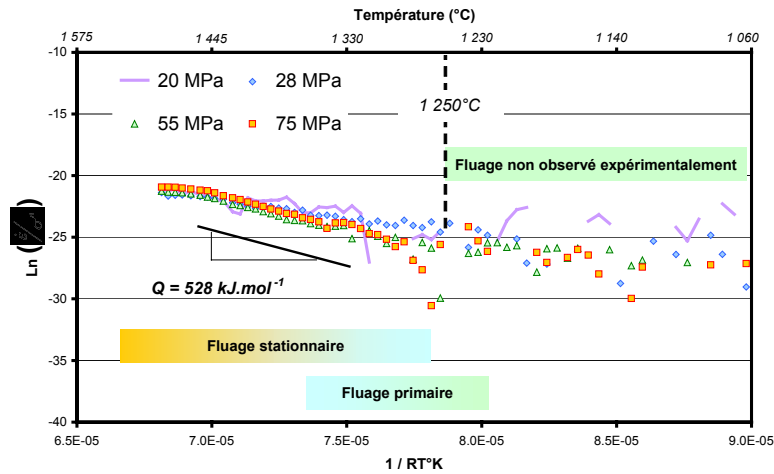


Figure 6.32 - Estimation de l'énergie d'activation à partir d'essais de fluage anisotherme.

On obtient une représentation beaucoup plus visuelle en utilisant la relation $\dot{\epsilon} \propto \sigma^{1.73} e^{-\frac{540 \text{ kJ.mol}^{-1}}{RT}}$ appliquée directement aux conditions d'essais anisothermes. Alors, comme le montre la Figure 6.33, un excellent ajustement est obtenu, ce qui justifie à posteriori les hypothèses faites pour les interprétations.

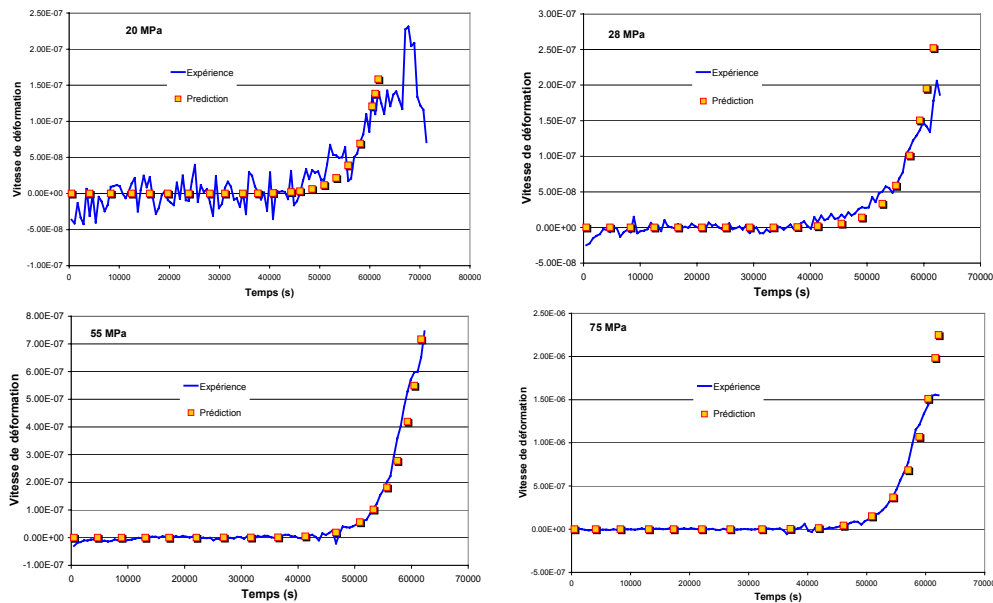


Figure 6.33 – Application de la loi de fluage stationnaire sur les essais de fluage anisothermes.

Il est toutefois important de noter que les éventuels effets d'écrouissage n'ont pas été pris en compte dans l'évaluation de l'énergie d'activation : ces effets tendraient à surestimer les vitesses de fluage à basse température (prédominance du fluage primaire) pour les premiers stades de déformations. Ces incertitudes sont donc visibles aux plus basses températures, légèrement supérieures à 1 250°C, plus particulièrement mis en évidence sur la Figure 6.32. A cela il faut ajouter les incertitudes expérimentales plus élevées pour les faibles vitesses de déformation et donc les plus basses températures.

6.7 Confrontation de nos résultats avec la littérature

L'ensemble de nos essais ont permis d'établir une loi de type Norton pour décrire le fluage stationnaire du dioxyde d'uranium en flexion trois point, soit :

$$\dot{\epsilon} \propto \sigma^{1.73} e^{-\frac{540 \text{ kJ.mol}^{-1}}{RT}}$$

Une comparaison de cette expression à la loi identifiée en compression par le CEA (dite LPCC 98) est illustrée par la Figure 6.34.

Pour les faibles contraintes, les deux lois produisent des résultats similaires. Pour des contraintes plus élevées, nos essais n'ont jamais révélé un deuxième domaine de déformation, contrairement à la loi LPCC, ce qui provoque naturellement une divergence des modèles. L'écart noté entre les deux lois sur l'influence de la température est dû aux valeurs d'énergie activation différentes utilisées par les modèles : 540 kJ.mol⁻¹ dans notre cas pour 390 kJ.mol⁻¹ dans la loi LPCC.

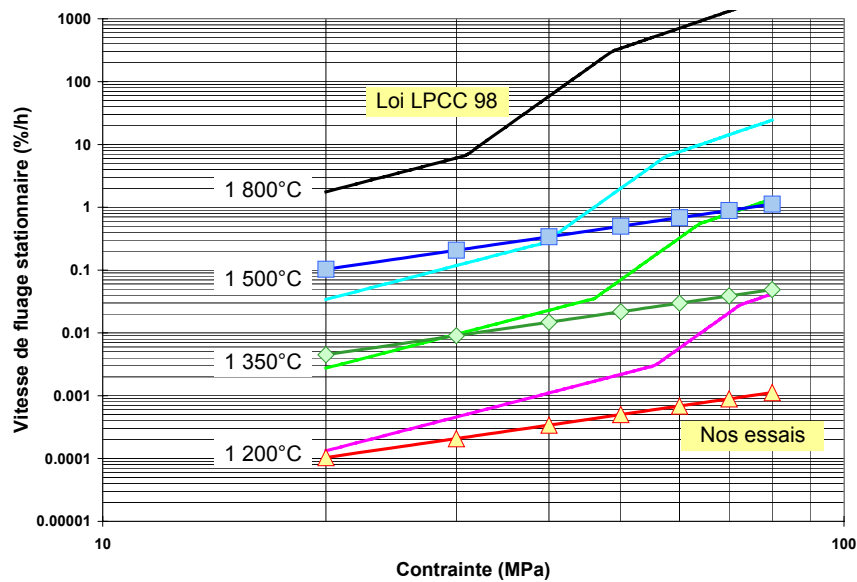


Figure 6.34 - Comparaison de nos résultats d'essais de flexion avec la loi LPCC 98.

Une confrontation de notre loi avec les résultats obtenus en flexion par un autre auteur (Armstrong 1962) a également été réalisée. Cet auteur a toutefois travaillé sur un matériau assez différent du nôtre : taille de grains de 6 μm et 96% de la densité théorique contre 14 μm et 94,7% pour le nôtre. Une comparaison directe étant donc impossible, il a été nécessaire de corriger les résultats d'Armstrong pour les ramener à une microstructure similaire à la nôtre.

Pour l'influence de la taille de grains, nous avons utilisé la relation proposée par Armstrong donnant à faibles contraintes une vitesse de fluage proportionnelle à l'inverse du carré de la taille de grains (Figure 6.35). Alors il vient :

$$\dot{\epsilon} \propto \frac{1}{g^2}$$

$$\frac{\dot{\epsilon}^{g=14\mu m}}{\dot{\epsilon}^{g=6\mu m}} = \left(\frac{6}{14}\right)^2 = 0,1838$$

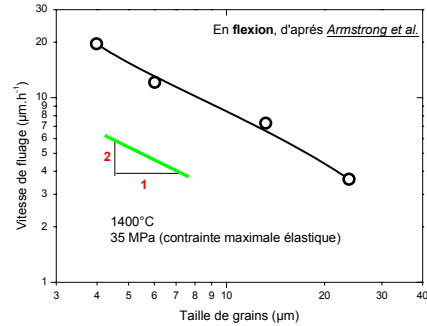
Pour corriger l'effet de la porosité, nous utiliserons la loi proposée par Bohaboy (Bohaboy 1969), soit :

$$\dot{\epsilon} \propto \frac{1}{\rho - 87,7}$$

$$\frac{\dot{\epsilon}^{P=5,3\%}}{\dot{\epsilon}^{P=4\%}} = \left(\frac{96 - 87,7}{94,7 - 87,7} \right) = 1,19$$

Figure 6.35 - Dépendance de la vitesse de fluage stationnaire en flexion avec la taille de grains.

(Armstrong 1962)



Finalement, une comparaison est faite entre les résultats d'essais obtenus lors de cette étude et les valeurs corrigées d'Armstrong sur la Figure 6.36. Nos essais effectués à 1 350°C se situent bien entre les essais réalisés par Armstrong à 1 300°C et 1 400°C. L'influence de la contrainte est toutefois légèrement plus marquée pour nos essais, ce qui peut être associé à la différence entre les exposants de contrainte (1,3 et 1,7). De même les écarts notés sur l'influence de la température sont à relier aux énergies d'activation (540 kJ.mol⁻¹ pour notre étude contre 390 kJ.mol⁻¹ pour Armstrong).

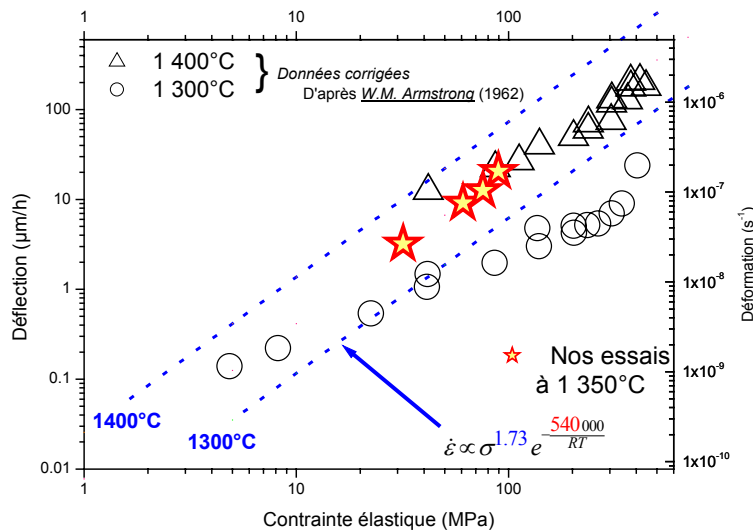


Figure 6.36 - Comparaison de nos résultats à ceux obtenus par Armstrong.

De cette confrontation, il ressort donc que nos essais ont révélé des vitesses de fluage stationnaire du même ordre de grandeur que les études précédentes. Le faible exposant de contrainte trouvé ici correspond plutôt au domaine dit des faibles contraintes, et est tout à fait similaire à la valeur trouvée par Armstrong en flexion trois points.

Par contre l'énergie d'activation mise en évidence dans notre étude est sujette à plus de discussions. En effet, cette valeur a été calculée à partir de cinq essais de fluage isotherme sous la même contrainte de 75 MPa. L'énergie de 540 kJ.mol^{-1} (correspondant à une diffusion volumique) a pu être vérifiée ici sur les essais anisothermes. Mais l'expérience montre que ce type d'essai anisotherme n'est pas discriminant pour la détermination d'une énergie d'activation, une forte variation de celle-ci n'ayant que peu d'influence sur la courbe résultante. Parallèlement l'exposant de contrainte calculé décrit le domaine dit des faibles contraintes, où la plupart des auteurs considèrent des mécanismes de déformation diffusionnels, avec une énergie d'activation plus faible, 390 kJ.mol^{-1} . Il y a là un point de divergence sur cette valeur d'énergie. Ce désaccord est encore plus accentué si l'on rappelle le travail récent de (Dherbey 2000, Dherbey 2002), appuyé par de nombreuses observations en microscopie en transmission, qui a proposé de décrire le fluage stationnaire sous une forme unique, avec une énergie d'activation s'apparentant à l'autodiffusion de U^{4+} . La valeur que nous avons trouvée correspondrait plutôt aux grandeurs fournies par (Knorr 1989) pour caractériser la diffusion volumique. Ainsi le dioxyde d'uranium que nous avons testé, dans notre domaine de sollicitation, se déformerait par des mécanismes dislocationnels, confortant les hypothèses de Dherbey.

Pour lever le doute sur la valeur de l'énergie, il faudrait avant tout enrichir la base expérimentale, par exemple en réalisant des essais à différentes températures sous des contraintes autres que 75 MPa, et effectuer des observations microstructurales pour vérifier les mécanismes de déformation.

Retour Sur la carte de fluage d'Ashby. (Frost 1982)

Comme nous venons de décrire notre base expérimentale, il nous est maintenant possible de placer nos essais de fluage sur la carte d'Ashby (Frost 1982), sur la Figure 6.37. Différents essais de flexion ont été réalisés pour des température variant de 1 300 à 1 500°C et pour des contraintes maximales de 100 MPa. Ainsi selon cette carte, le dioxyde d'uranium peut fluier suivant deux mécanismes, diffusionnels ou suivant une loi puissance, selon les sollicitations. Il faut toutefois noter que lors d'un essai de flexion, le matériau subit l'ensemble des niveaux de contraintes jusqu'à la valeur maximale (« solution élastique ») utilisée pour caractériser nos essais. Aussi ce type d'essai a tendance à « descendre les niveaux de contrainte » ; le dioxyde d'uranium se déformerait plus probablement par mécanismes diffusionnels (exposant de contrainte proche de l'unité) dans nos essais de flexion.

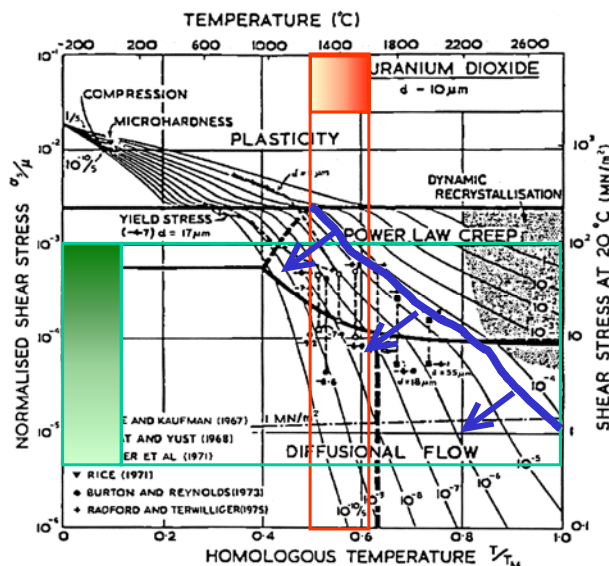


Figure 6.37 - Superposition de nos essais avec la carte de fluage d'Ashby.

6.8 Conclusions

Ce chapitre a été l'occasion de présenter nos résultats expérimentaux obtenus en flexion trois points sur le dioxyde d'uranium.

Tout d'abord, une courte étude bibliographique a montré que très peu de résultats sont disponibles sur le comportement du combustible en flexion. Les principaux résultats ont concerné la contrainte à rupture qui est de l'ordre de 150 MPa à température ambiante et qui varie peu avec la température. Cette valeur est fonction évidemment de la microstructure du matériau. Ces mêmes essais à rupture ont mis en évidence une transition de comportement vers 1 350°C, la céramique passant d'un comportement fragile à viscoplastique. Lors d'essais de fluage, Armstrong a montré une influence de la contrainte sur les vitesses de déformation stationnaire, avec un exposant de contrainte faible de 1,3. L'énergie d'activation calculée est de 390 kJ.mol⁻¹ et correspond à l'énergie de diffusion aux joint de grains de UO₂.

Il a alors été possible de comparer les différentes vitesses de déformation du dioxyde d'uranium sollicité de diverses manières (compression, traction et flexion), comparaison qui n'a pas mis en évidence de dissymétrie de comportement. Toutefois, la confrontation des résultats n'est pas évidente car les essais réalisés sont loin d'être similaires (microstructure du matériau, atmosphère).

Pour notre étude, nous avons décidé de caractériser des barreaux découpées dans des pastilles issues d'un Lot B. Ce lot sert de référence au CEA. La porosité bimodale est d'environ 5,3%. La taille de grains, hétérogène, a été estimée à 14 µm. Les éprouvettes ont été découpées à l'aide d'une scie à fil, qui permet l'obtention de tranches fines avec des plans de coupe parallèles.

Des essais de fluage anisothermes nous ont permis de cerner le domaine d'étude. Ces derniers ont mis en évidence un fléchissement significatif débutant à 1 250°C. Des essais à 1 350°C sur le dioxyde d'uranium ont permis de mesurer une contrainte à rupture d'environ 170 MPa, comparable aux valeurs annoncées dans la littérature. De même il a été possible d'obtenir des valeurs de module d'élasticité cohérentes, dans la limite de résolution de notre dispositif. Enfin les essais sous chargement monotone n'ont pas révélé de pic de contrainte, comme les pics de compression décrits dans le troisième chapitre.

Les essais de fluage isothermes à différentes températures et charges ont permis d'établir une loi simple pour décrire le fluage stationnaire du matériau, de la forme :

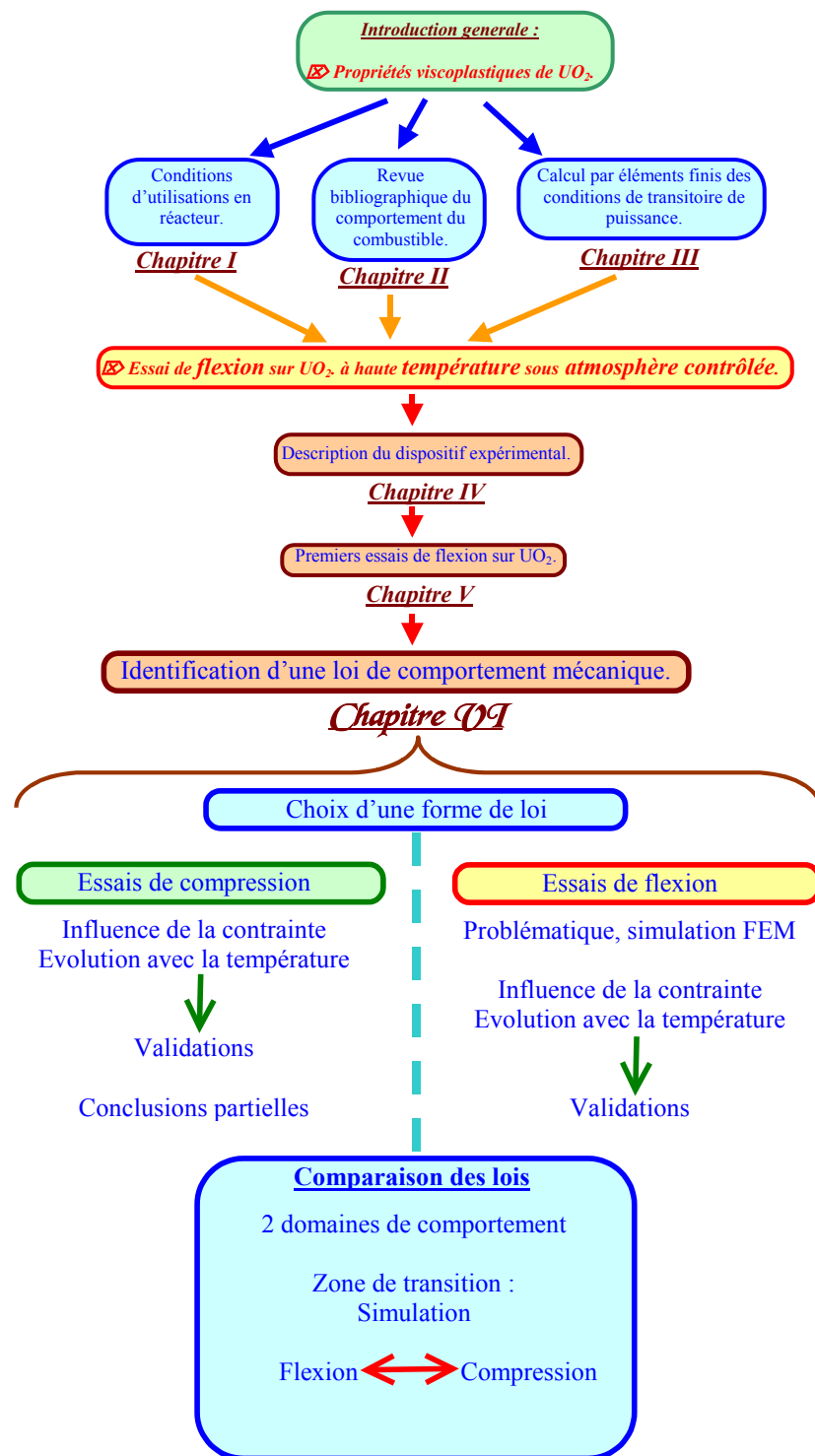
$$\dot{\epsilon} \propto \sigma^{1.73} e^{-\frac{540 \text{ kJ.mol}^{-1}}{RT}}$$

L'exposant de contrainte faible (1,73) est du même ordre de grandeur que celui trouvé par Armstrong. Par contre l'énergie d'activation de 540 kJ.mol⁻¹ est plus élevée ici. Ces paramètres sont corroborés par des essais de fluage anisotherme et de relaxations multiples. Cette loi prédit des vitesses de déformation similaires à celles prévues par la loi identifiée au CEA en compression sur le même matériau, mais ne révèlent que le seul mécanisme de déformation à basse contrainte. Enfin nos essais sont en accord avec les valeurs reportées par Armstrong préalablement corrigées pour tenir compte de l'effet de la microstructure.

Nos essais de flexion sur le dioxyde d'uranium sont donc considérés comme cohérents entre eux. De plus ils correspondent avec les déformations annoncées dans la littérature et les lois utilisées au CEA pour décrire le fluage stationnaire. Nous allons par la suite de l'étude identifier une loi de comportement mécanique plus complexe, capable notamment de décrire le fluage primaire de la céramique.

7 Identification d'une loi de comportement mécanique





7	IDENTIFICATION D'UNE LOI DE COMPORTEMENT MECANIQUE
7.1	CHOIX D'UNE LOI
7.2	ESSAIS DE COMPRESSION
7.2.1	Influence de la contrainte, à 1 500°C
7.2.2	Evolution avec la température
7.2.3	Validation
7.2.4	Récapitulatif
7.3	ESSAIS DE FLEXION
7.3.1	Problématique
7.3.2	Simulation par calcul aux éléments finis
7.3.3	Influence de la contrainte, à 1 350°C
7.3.4	Evolution avec la température
7.3.5	Validation de la loi
7.4	COMPARAISON DES DEUX LOIS
7.4.1	Deux domaines de comportements
7.4.2	Zone de transition : essais de fluage
7.4.3	Essais à vitesses de déformation imposée
7.5	CONCLUSION

7.1 Choix d'une forme de loi

La loi phénoménologique de comportement mécanique que nous avons utilisée a été développée dans le cadre de la thermomécanique des milieux continus de Lemaître et Chaboche. Dans cette formulation, des potentiels et des variables thermodynamiques sont capables de décrire l'état mécanique du matériau (Lemaitre 1988), à partir d'une partition des déformations en une part élastique et une composante inélastique :

$$\mathcal{E}_{Tot} = \mathcal{E}_{Elastique} + \mathcal{E}_{Inelastique}$$

La partie inélastique est associée à des variables internes d'écrouissage qui vont piloter les déformations. Les contraintes internes sont alors définies comme les dérivées du potentiel par rapport à ces variables internes.

La vitesse de déformation inélastique est normale à la surface d'écoulement viscoplastique, définie selon Von Mises par :

$$\dot{\mathcal{E}}_{Inelastique} = \dot{\mathcal{E}}_p = \dot{\nu} \underline{\eta} \quad \text{avec} \quad \underline{\eta} = \frac{\delta f}{\delta \underline{\sigma}} \quad f = J(\underline{\sigma} - \underline{X}) - R_0 = 0$$

J est le second invariant du tenseur des contraintes. Le seuil d'écoulement R_0 est souvent considéré comme égal à zéro en fluage, réduisant le domaine élastique du matériau à un point. \underline{X} est le déviateur des contraintes internes. Le multiplicateur viscoplastique $\dot{\nu}$ correspond à la vitesse de déformation plastique cumulée :

$$\dot{\nu} = \left\langle \frac{J(\underline{\sigma} - \underline{X}) - R_0}{K} \right\rangle^n$$

Il faut définir l'évolution de X , contrainte interne qui a tendance à s'opposer à la sollicitation extérieure. Pour simplifier, considérons un cas uniaxial dans lequel σ se réduit à σ et X à X . Alors lorsque la contrainte extérieure σ diminue brusquement, plusieurs cas se présentent. Si celle-ci reste supérieure à la contrainte interne, le matériau flue mais plus lentement. Lorsque les deux contraintes sont égales, le fluage du matériau s'arrête. Si la contrainte appliquée passe en dessous de la contrainte interne, la contrainte motrice de fluage devient négative, et les déformations ont alors lieu dans le sens opposé à la contrainte appliquée. L'existence d'une contrainte interne est mise en évidence lors de dip tests. Cette procédure consiste à diminuer brutalement la charge appliquée et à maintenir un niveau bas assez longtemps pour pouvoir observer la réponse du matériau. Un exemple obtenu en flexion à 1 350°C est présenté sur la Figure 7.1. Lors du déchargement, après la marche due à la diminution de la déformation élastique, on observe une recouvrance de la déformation, le matériau fluant dans le sens opposé à la charge appliquée. Cette réponse du matériau est typique d'un écrouissage cinématique.

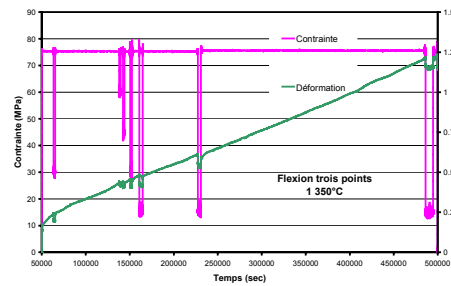
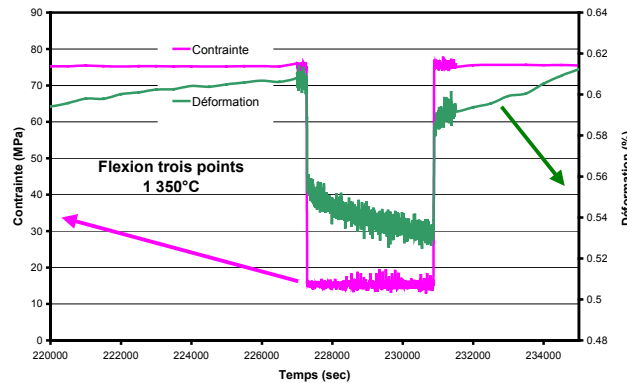


Figure 7.1 - Essai de dip-test en flexion à 1 350°C sur le dioxyde d'uranium : mise en évidence d'un écrouissage cinématique.



La recouvrance est naturellement plus ou moins marquée suivant le niveau de déchargement. Si la durée de déchargement est suffisamment longue, la contrainte interne se relaxe et il y a une reprise logique du fluage de l'éprouvette dans le sens de la contrainte appliquée, comme on peut l'observer par exemple sur la Figure 7.2.

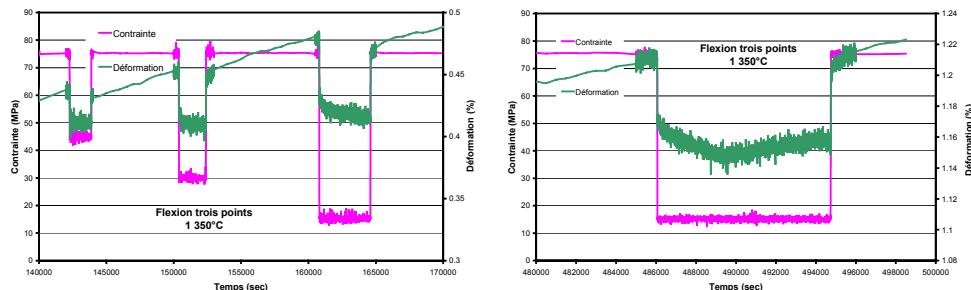


Figure 7.2 - Influence du niveau de déchargement et du temps de maintien lors de dip tests.

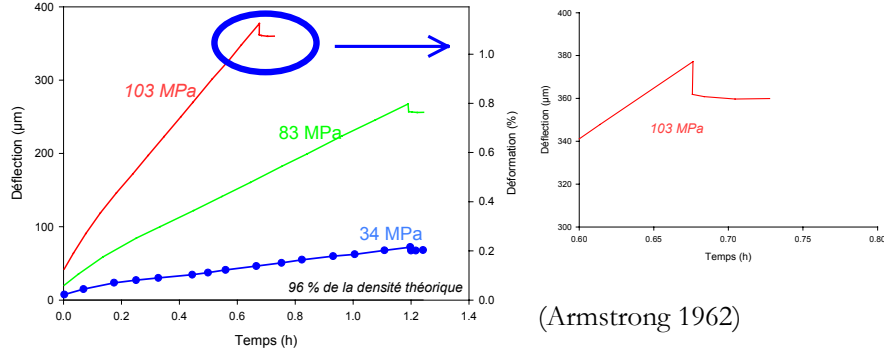


Figure 7.3 - Courbes de fluage en flexion 3 points obtenues à 1 400°C par Armstrong.

Ce comportement spécifique du matériau a également été mis en évidence par des essais de flexion par (Armstrong 1962). En effet comme le montrent les courbes de fluage, reportées sur la Figure 7.3, Armstrong a procédé à un déchargement complet des éprouvettes en fin d'essai, qui donne lieu à des phénomènes de recouvrance. L'auteur les avait interprétés comme une « viscoélasticité » à relaxation rapide, dont une loi à écrouissage cinématique peut parfaitement rendre compte.

L'évolution de la contrainte interne dans l'écrouissage cinématique est décrite par une équation générale de la forme :

$$\dot{\tilde{\chi}} = \frac{2}{3} C \dot{\tilde{\epsilon}}_p - D \tilde{\chi} \dot{\nu}$$

Cette écriture fait apparaître deux termes : une composante proportionnelle aux vitesses de déformation et une partie de rappel créant un effet de mémoire du fluage. Pour une contrainte appliquée constante, la vitesse de déformation diminue tant que la contrainte interne augmente, ceci jusqu'à atteindre une valeur constante : il est ainsi possible de décrire les deux premiers stades du fluage, transitoire et stationnaire.

Finalement, pour définir une loi simple de comportement mécanique en introduisant une contrainte interne d'écrouissage cinématique, il faut donc évaluer quatre paramètres : K et n décrivant une loi puissance de type Norton ; C et D la cinétique d'évolution de la contrainte interne. Le jeu complet d'équations constitutives du comportement en fluage s'écrit :

$$\tilde{\epsilon}_{Tot} = \tilde{\epsilon}_{Elastique} + \tilde{\epsilon}_{Inelastique}$$

$$\dot{\tilde{\epsilon}}_{Inelastique} = \dot{\tilde{\epsilon}}_p = \dot{\nu} \tilde{n} \quad \text{avec} \quad \tilde{n} = \frac{\delta f}{\delta \tilde{\sigma}} \quad f = J(\tilde{\sigma} - \tilde{\chi}) - R_0$$

$$\dot{\nu} = \left\langle \frac{J(\tilde{\sigma} - \tilde{\chi}) - R_0}{K} \right\rangle^n$$

$$\dot{\tilde{\chi}} = \frac{2}{3} C \dot{\tilde{\epsilon}}_p - D \tilde{\chi} \dot{\nu}$$

7.2 Essais de compression

Dans un premier temps, nous avons analysé une base d'essais de compression, de fluage et à vitesse de déformation imposée, effectués au CEA Grenoble et au CEA Cadarache, à partir de données numériques fournies par Michel Sladkoff. Ces tests concernent des pastilles d'oxyde d'uranium issues d'un lot B, donc analogue à celui de notre étude. Ces essais ont en général été réalisés dans des conditions dites standard, en particulier sous argon hydrogéné. Nous avons considéré ces essais de compression comme des essais uniaxiaux (élément de volume), la déformation en tonneau, l'apparition de cisaillement ou l'endommagement n'étant pas pris en compte.

Dans cette partie nous nous intéressons à ce cas élémentaire uniaxial. Il fournit une approche plus simple que l'écriture tridimensionnelle précédente. La loi unidirectionnelle est beaucoup plus accessible et permet de mieux appréhender l'influence des différents paramètres sur le comportement du matériau. Ici, comme par la suite, nous avons choisi de traiter l'influence de la température en considérant que tous les paramètres de la loi sont sensibles à la température.

Pour décrire au mieux le comportement du matériau, une solution consiste donc à introduire une contrainte interne X , comme nous l'avons vu plus haut. Elle correspond à une réponse du matériau à la sollicitation extérieure. Alors, la vitesse de déformation ne dépend pas de la contrainte appliquée σ , mais de la contrainte effective $\sigma - X$. La loi de type Norton pour décrire le fluage stationnaire est toujours applicable, dans la mesure où la contrainte considérée est la contrainte effective :

$$\dot{\varepsilon} = \left(\frac{\sigma - X}{K} \right)^n$$

Afin de décrire le fluage stationnaire sous contrainte constante, la contrainte interne doit suivre une loi asymptotique en cours d'essai, vers une valeur inférieure à la contrainte appliquée. Pour cette étude le choix est fait de décrire X , en fonction de la déformation du matériau, par la relation :

$$X = \frac{C}{D} (1 - e^{-D\varepsilon})$$

Cette forme exponentielle permet d'atteindre une valeur maximale de C/D , le paramètre D caractérisant la déformation nécessaire pour atteindre cette valeur. Cette forme est l'écriture uniaxiale d'un écrouissage cinématique, comme nous venons de le voir en introduction à ce chapitre. La loi finale uniaxiale obtenue est donc :

$$\dot{\varepsilon} = \left(\frac{\sigma - \frac{C}{D}(1 - e^{-D\varepsilon}) - R_0}{K} \right)^n$$

R_0 correspond au seuil d'écoulement du matériau, considéré en fluage comme nul. Ce choix se justifie par le fait que les mécanismes de fluage sont basés sur des phénomènes diffusionnels. La contrainte interne peut être créée par une augmentation de la densité de dislocations jusqu'à une saturation lorsque tous les systèmes de glissement sont activés. La contrainte effective correspond à la contrainte subie par les dislocations mobiles. Plusieurs auteurs ont une interprétation similaire du fluage primaire, par exemple (Solomon 1982).

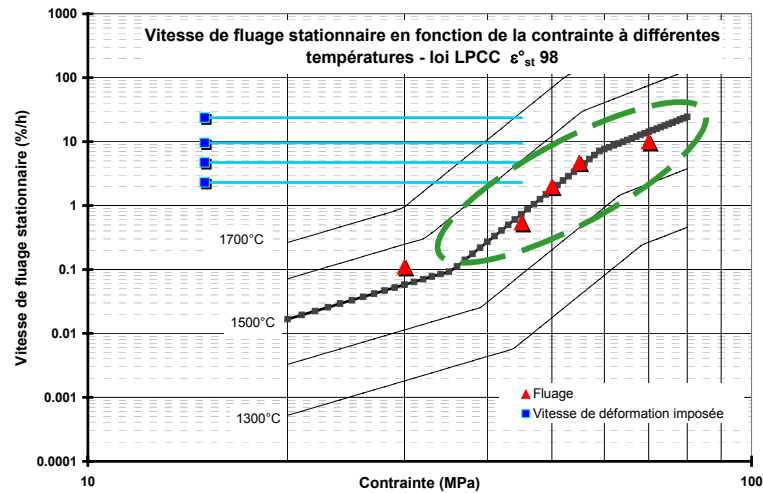
Nous venons donc de voir que, dans ce cas uniaxial, il est possible d'obtenir une écriture simple de la loi de fluage de l'oxyde. La vitesse de déformation est fonction de la contrainte appliquée, du taux de déformation et des quatre paramètres : K et n définissent une loi de type Norton, C et D décrivent l'écrouissage cinématique du matériau. Plus précisément, D caractérise la vitesse de saturation de la contrainte interne, c'est-à-dire la déformation nécessaire pour atteindre le fluage stationnaire du matériau. C/D définit la valeur maximale de cette contrainte interne. Pour tenir compte de l'influence de la température sur le comportement du matériau, nous avons considéré que ces quatre paramètres K , n , C et D varient en fonction de cette température.

Enfin, pour représenter les essais, nous avons choisi un espace spécifique. En effet l'équation ci-dessus montre que les « variables d'entrée » sont la contrainte appliquée et les déformations ; la « valeur de sortie » étant la vitesse de déformation. Aussi, pour représenter les essais de fluage sous contrainte constante, nous avons considéré un espace vitesse de déformation en fonction de la déformation.

7.2.1 Influence de la contrainte, à 1 500°C

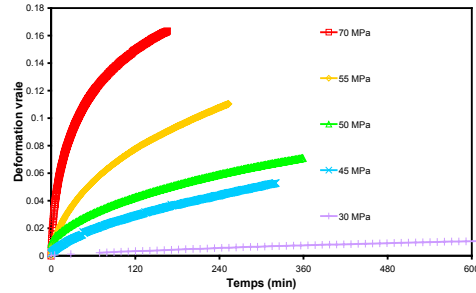
La base d'essais disponible est particulièrement riche à 1 500°C. Sur la Figure 7.4 sont présentés cinq essais de fluage (triangles rouges), dans l'espace vitesse de déformation-contrainte (échelle log-log), ainsi que la loi LPCC. Sur cette même figure sont représentés par des carrés bleus les essais à vitesse de déformation imposée.

Figure 7.4 - Base d'essais à 1 500°C en compression, superposition avec la loi LPCC.



Les essais de fluage sont reportés sur la Figure 4.15, où la déformation est tracée en fonction du temps. Pour simplifier la représentation, les contraintes de compression et les déformations sont notées positives. Il faut atteindre des déformations relativement importantes pour qu'un fluage stationnaire apparent se dessine (par exemple 2% pour 45 MPa). Plus la contrainte appliquée est élevée, plus le fluage primaire semble se prolonger et, pour les plus hautes contraintes, il n'est pas évident que le matériau se trouve dans un état de fluage stationnaire en fin d'essai.

Figure 7.5 - Essais de fluage sur un lot B en compression à 1 500°C, de 30 à 70 MPa



L'optimisation des valeurs des paramètres de la loi est effectuée grâce au logiciel ORIGIN, qui utilise la méthode de Levenberg-Marquardt. A chaque instant de l'essai, les données fournies au programme (contrainte appliquée vraie et déformation vraie) lui permettent d'ajuster les coefficients de la loi pour les cinq essais de fluage. Les incertitudes calculées sur les coefficients restent inférieures à 5%. Les valeurs numériques ainsi obtenues sont résumées dans le Tableau 7-1 et les confrontations modèle-expériences sont présentées sur la Figure 7.6, dans l'espace vitesse de déformation en fonction de la déformation, pour les cinq essais de fluage effectués entre 30 et 70 MPa.

Température	C		D		C/D	K		n	
1400°C	1136	4.5	17	7.8	67	263	3.5	6.83	2.5
1500°C	357	± 1.6 %	10	± 2.8 %	35	238	± 1.0 %	6.81	± 0.7 %
1600°C	121	23	24	22.5	5	177	5.0	7.28	3.9

Tableau 7-1 - Coefficients de la loi avec un écoulement cinématique pour un lot B en compression.

Cet ensemble de graphiques illustre le bon accord entre modélisation et expérience. Dans tous les cas, l'écart reste limité : tout au plus, on observe un facteur 2 sur les vitesses de déformation pour les faibles contraintes, pour lesquelles le signal expérimental est par ailleurs très bruité. La loi décrit alors de moins en moins bien le fluage primaire du matériau mais la vitesse de fluage secondaire demeure correctement décrite.

Comme on peut le remarquer sur la Figure 7.4, les essais à vitesse de déformation imposée se trouvent près de la limite supérieure du domaine qui a servi à l'optimisation de la loi, en termes de vitesses de déformation. Nous les utilisons ici pour la validation de notre modèle. Lorsque la vitesse de déformation est imposée, l'équation constitutive devient :

$$\sigma = K \dot{\epsilon}^{1/n} + C/D (1 - e^{-D\epsilon}) + R_0$$

Une comparaison avec les courbes expérimentales est faite sur la Figure 7.7. Le simple choix d'un seuil d'écoulement R_0 nul conduit à un bon accord avec l'expérience pour des déformations allant jusqu'à environ 9%, quelle que soit la vitesse imposée. Comme observé précédemment, cette loi se rapproche d'autant plus de l'expérience que les vitesses de déformation sont élevées.

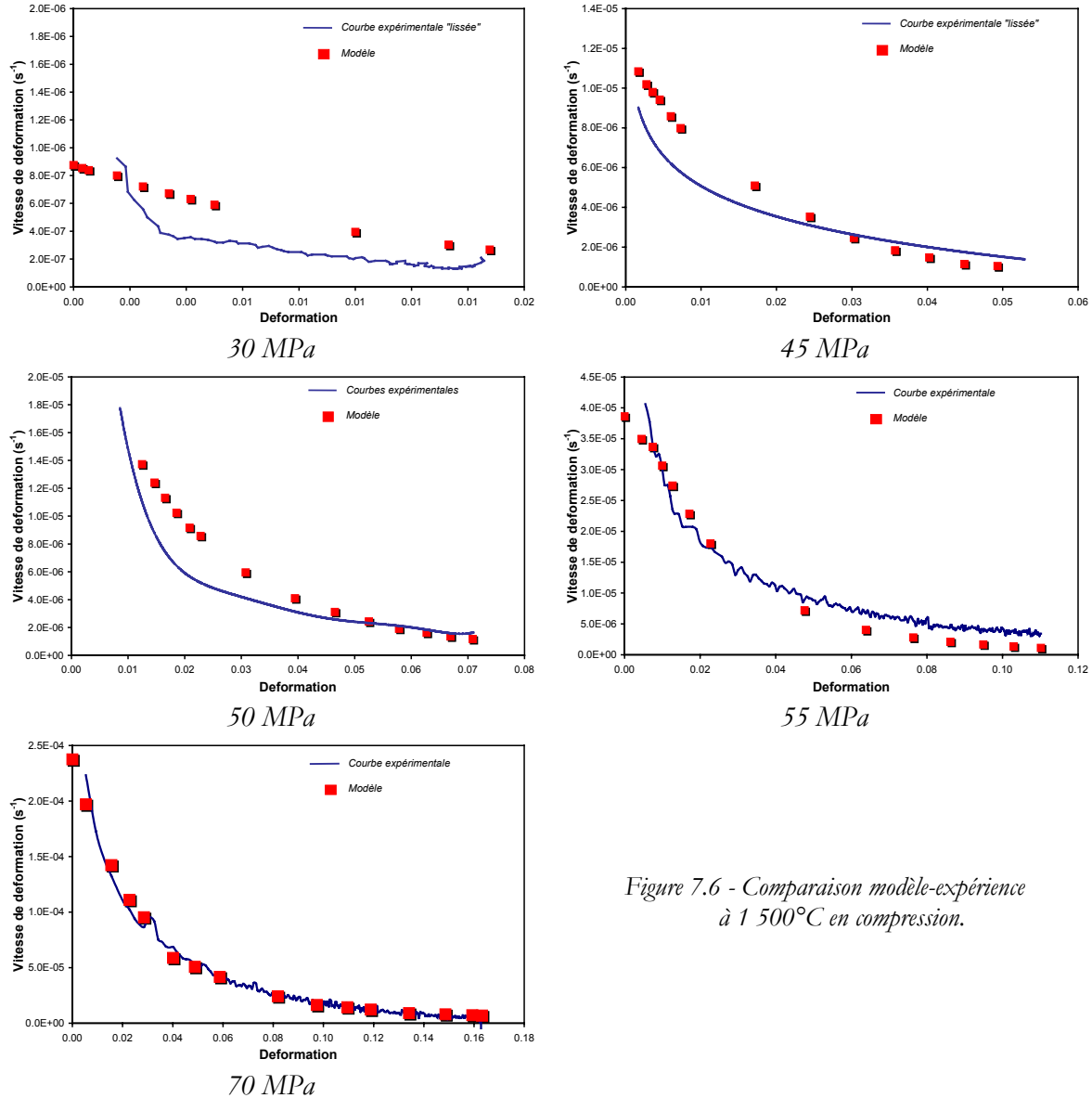


Figure 7.6 - Comparaison modèle-expérience
à $1500^{\circ}C$ en compression.

7.2.2 Evolution avec la température

Les résultats d'essais disponibles à $1600^{\circ}C$ sont récapitulés sur la Figure 7.8, avec le même système de notation que celui de la Figure 7.4. La base d'identification disponible à $1600^{\circ}C$ est réduite à 3 essais de fluage, représentés sur la Figure 7.9. Une identification, par une méthode analogue à celle utilisée pour les essais à $1500^{\circ}C$, conduit également à un bon ajustement et à des remarques similaires. Dans la même démarche, il est possible de confronter cette loi avec les résultats d'essais à vitesse de déformation imposée : cette comparaison est faite sur la Figure 7.10. Le modèle décrit bien les faibles déformations, jusqu'à environ 5%. Par contre, pour les forts taux, la loi simple utilisée ici ne permet pas de décrire l'allure des courbes aux fortes diminutions de hauteur.

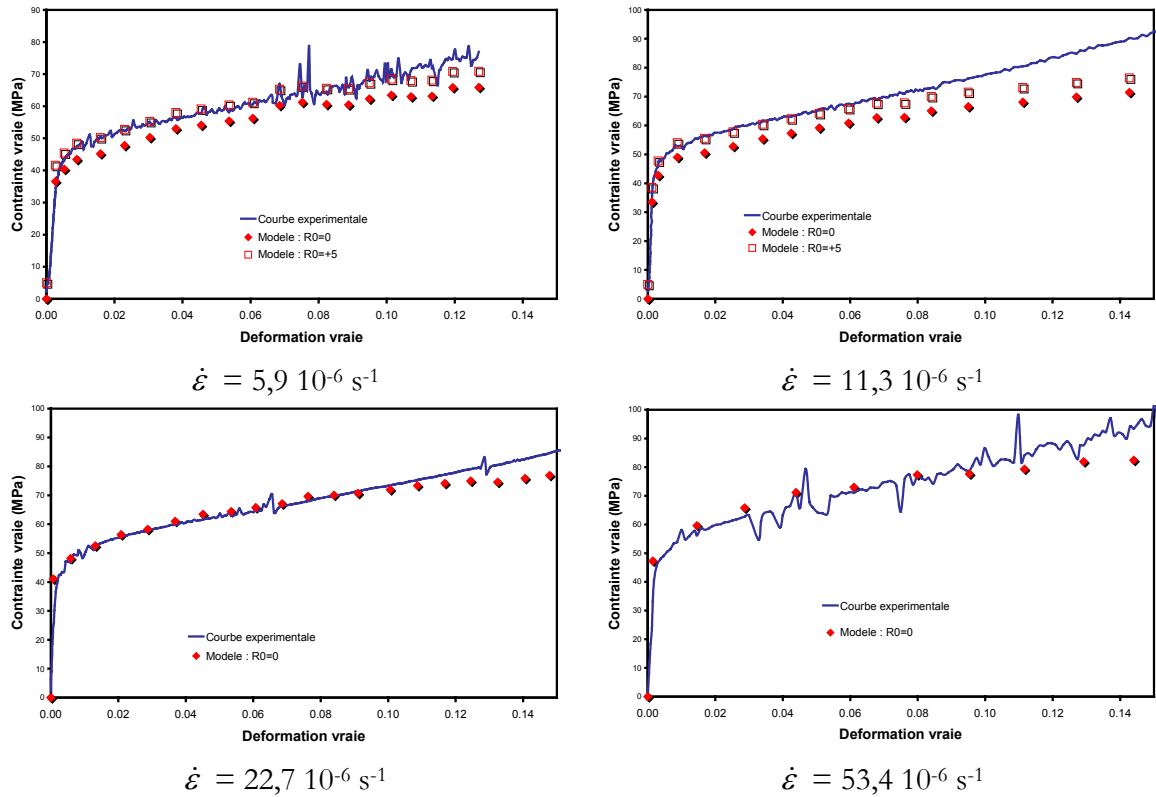


Figure 7.7 - Comparaison expérience-modèle pour les essais à vitesse de déformation imposée à 1 500°C.

Ainsi, nous venons de voir que la loi que nous avons identifiée peut décrire à la fois les essais de fluage et les essais à vitesse de déformation imposée, pour peu que les vitesses de déformation soient comparables. Or la base expérimentale disponible à 1 400°C se limite à un seul essai de fluage, reporté sur la Figure 7.11 : l'identification a donc été réalisée sur l'ensemble de la base expérimentale, essais de fluage et à vitesse de déformation imposée. Encore une fois, un bon accord est observé jusqu'au moins 5% de déformation.

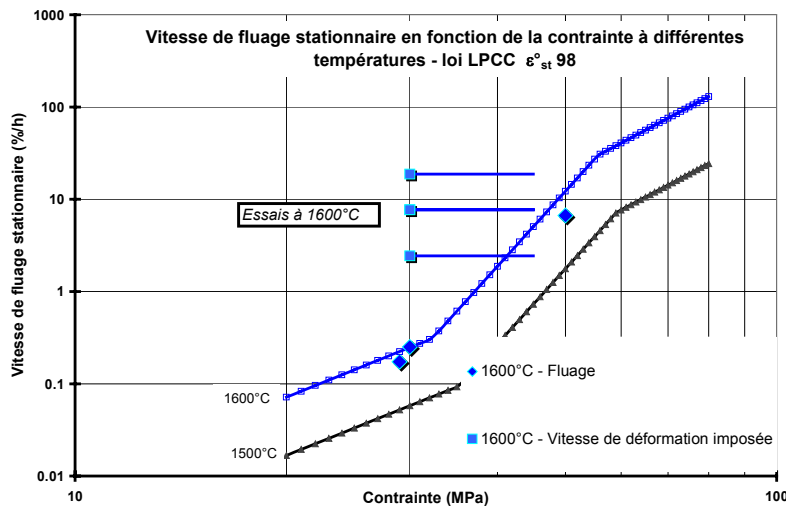
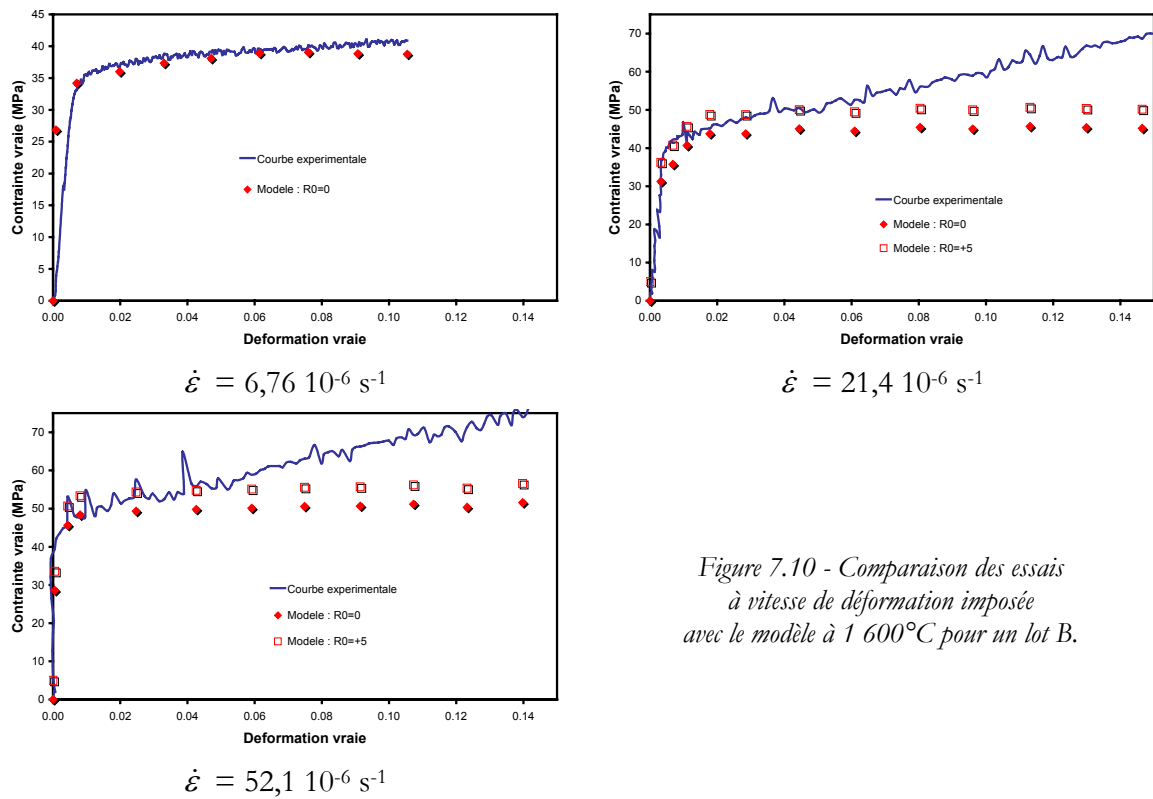
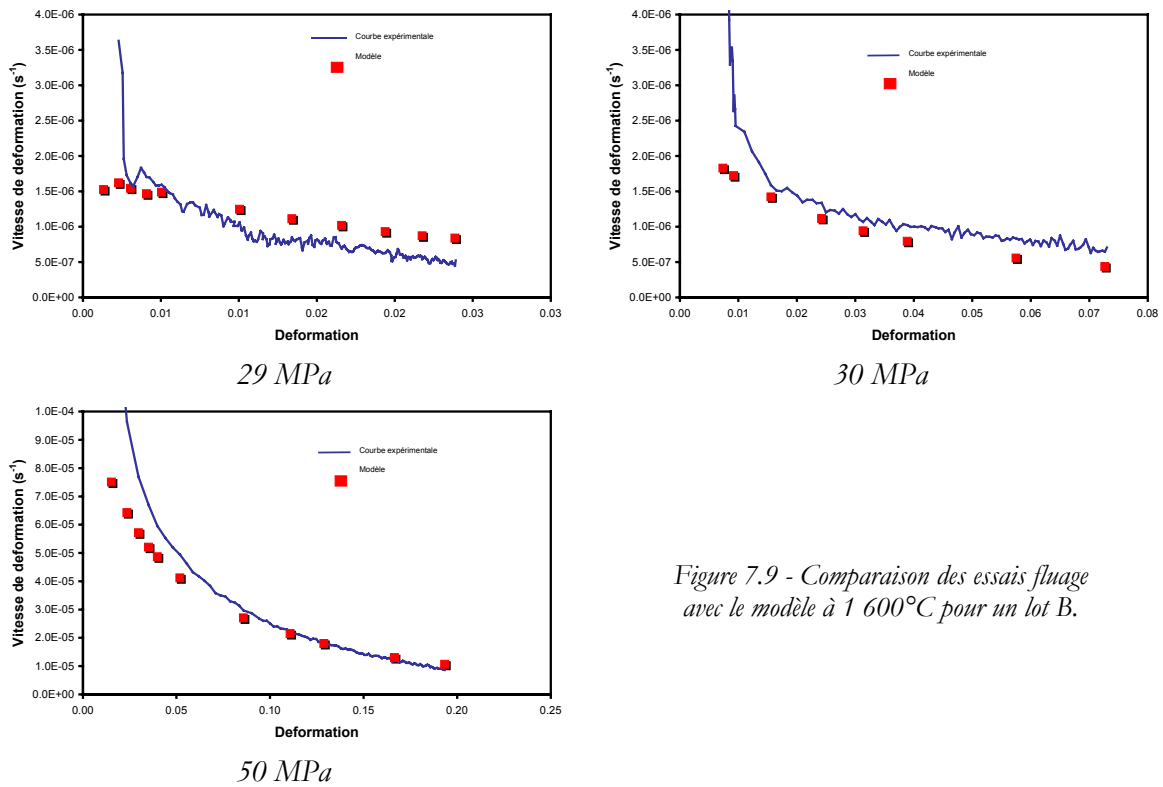


Figure 7.8 - Base d'essais à 1 600°C en compression, superposition avec la loi LPCC.



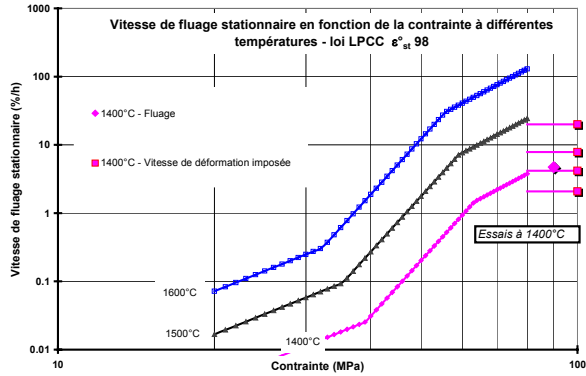


Figure 7.11 - Base d'essais à 1400°C en compression, superposition avec la loi LPCC.

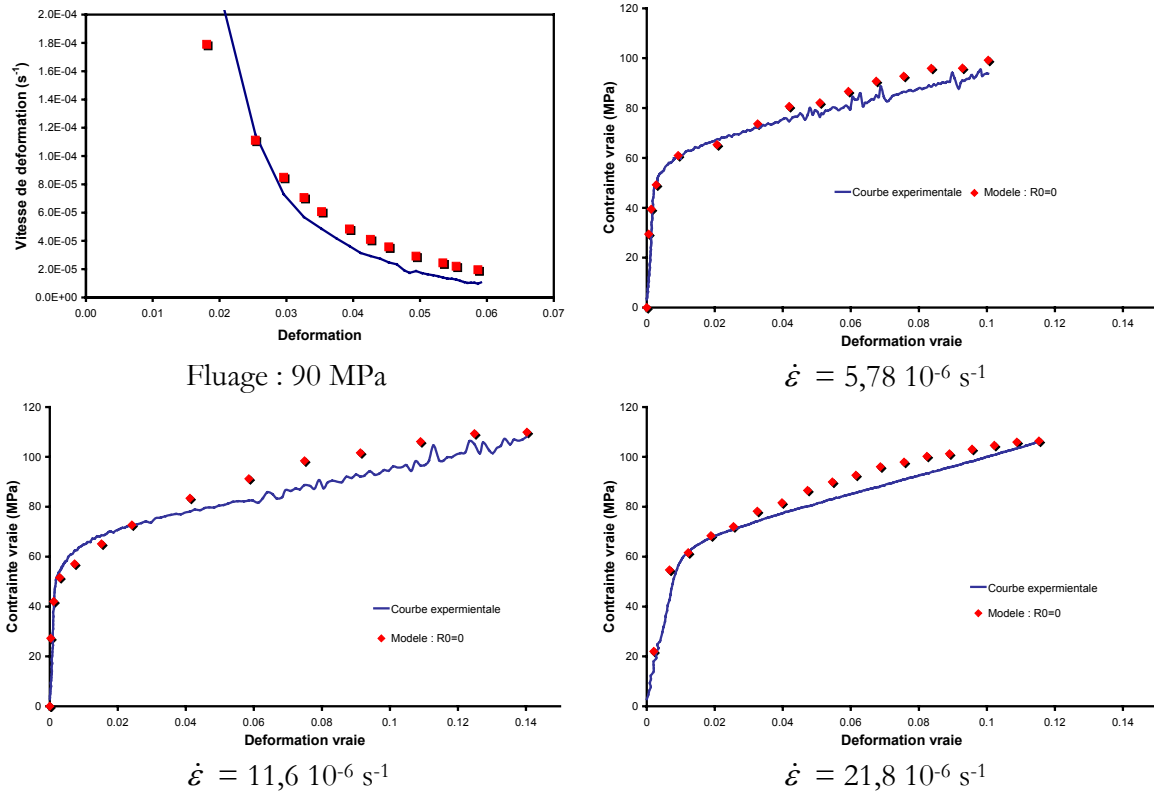


Figure 7.12 - Comparaison des essais à vitesse de déformation imposée avec le modèle à 1400°C pour un lot B.

7.2.3 Validation

Le modèle utilisé décrit bien le comportement en fluage du dioxyde d'uranium (lot B) entre 1400 et 1600°C. L'accord est meilleur pour les fortes contraintes, pour lesquelles les vitesses de déformation sont plus élevées. Les essais à vitesse de déformation imposée ont validé cette loi pour les différentes températures considérées, sous des conditions de contrainte variable. Il reste à vérifier si le jeu de paramètres choisi rend bien compte de l'influence de la température. Pour cela nous utilisons un essai de relaxation réalisé à 1470°C, décrit sur la Figure 7.14. La loi de comportement est, quant à elle, interpolée entre 1400 et 1500°C.

Les différentes valeurs des coefficients du modèle en fonction de la température sont résumées dans le Tableau 7-1 (page 138) et sur la Figure 7.13. Évidemment, lorsque la base est riche, comme à 1 500°C, les incertitudes sont minimales ; pour les deux autres températures les erreurs augmentent. Cette figure donne une tendance globale pour les paramètres de notre loi. Sur la Figure 7.13 sont également représentées les différentes valeurs que nous avons interpolées pour notre loi à 1 470°C.

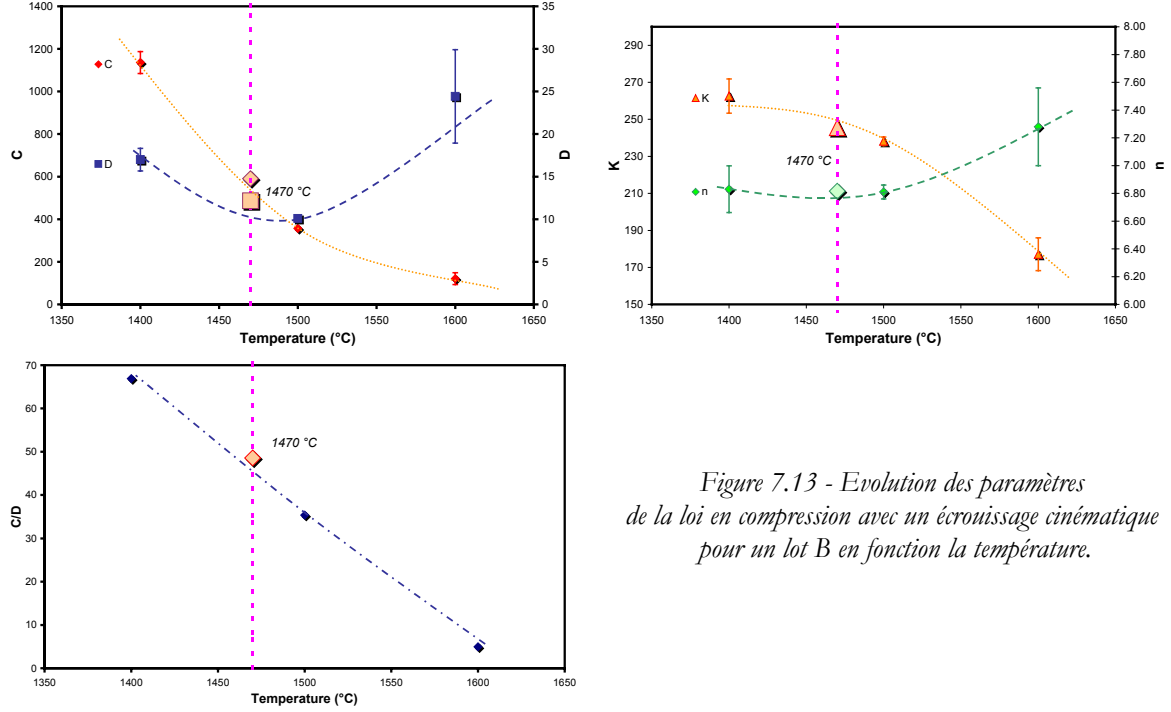


Figure 7.13 - Evolution des paramètres de la loi en compression avec un écrouissage cinématique pour un lot B en fonction la température.

Lors d'un essai de relaxation la déformation est imposée, la variable caractéristique est la contrainte qui diminue au cours du temps. Les variables d'entrée dans le modèle sont donc cette fois les déformations et vitesses de déformation expérimentales ; la variable de sortie étant la contrainte résultante. Dans un essai de relaxation, la vitesse de déformation est fonction de l'évolution de la contrainte par :

$$\varepsilon = Cte \quad \dot{\varepsilon} = 0 = \dot{\varepsilon}_{El} + \dot{\varepsilon}_p$$

$$\dot{\varepsilon}_p^{Exp} = -\frac{\dot{\sigma}^{Exp}}{E} \quad (= -\dot{\varepsilon}_{El})$$

L'équation constitutive s'écrit alors, en tenant compte de la convention de signe sur la contrainte :

$$\sigma^{Modèle} = K \left(\underbrace{\frac{\dot{\sigma}^{Exp}}{E}}_{\dot{\varepsilon}_p} \right)^{1/n} + \frac{C}{D} \left(1 - e^{-D \varepsilon^{Exp}} \right)$$

La Figure 7.14 illustre le bon accord ainsi obtenu entre modèle et expérience.

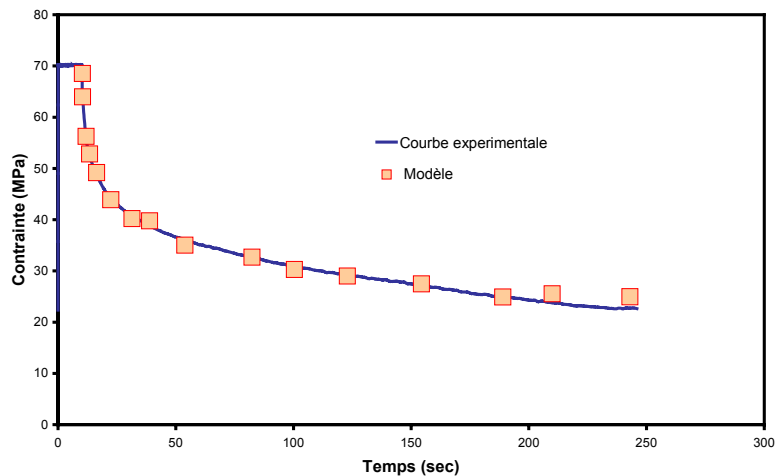


Figure 7.14 - Essai de relaxation en compression sur une pastille d'un lot B à 1470°C.

7.2.4 Récapitulatif

Dans notre étude, nous nous sommes proposé de caractériser le comportement mécanique de combustible issu de pastilles d'un Lot B, qui est une référence au CEA. Dans une approche simplifiée uniaxiale en compression, nous avons utilisé un modèle type Norton avec une contrainte interne correspondant à un écrouissage cinématique. Nous utiliserons le même type de modèle pour décrire nos essais de flexion. Cette loi permet de décrire correctement les stades primaire et secondaire du fluage, et les phénomènes de recouvrance que nous allons expliciter par la suite.

Cette première approche uniaxiale permet de mieux appréhender ce type de loi, où l'écriture unidirectionnelle est beaucoup plus abordable et intuitive. La base expérimentale et les paramètres obtenus sont regroupés dans le Tableau 7-2 (page 145).

L'optimisation nous a permis d'obtenir un jeu de quatre coefficients qui permet de décrire le comportement en fluage de UO_2 en compression. Notre loi a été validée grâce aux différents essais à vitesse de déformation imposée et à un essai de relaxation à 1470°C.

Cette loi simple est couramment utilisée dans les codes de calculs et est donc généralement déjà implémentée. Par contre, il faut garder à l'esprit que cette identification a été réalisée à partir d'une base expérimentale limitée, ce qui en réduit quelque peu la précision.

1 600°C	Base expérimentale			
	Fluage	Ecrouissage	Relaxation	
	30 à 50 MPa	7 à 50 10 ⁻⁶ s ⁻¹		
	3 Essais	3 Essais		
	Identification	Validation		
	Paramètres			
	K	n	C	D
	177	7.28	121	24

1 500°C	Base expérimentale			
	Fluage	Ecrouissage	Relaxation	
	30 à 70 MPa	6 à 55 10 ⁻⁶ s ⁻¹		
	5 Essais	4 Essais		
	Identification	Validation		
	Paramètres			
	K	n	C	D
	238	6.81	357	10

1 470°C	Base expérimentale			
	Fluage	Ecrouissage	Relaxation	
	Extrapolation des coefficients		1 Essai	
			Vérification	
	Paramètres			
	K	n	C	D
	245	6.82	590	12

1 400°C	Base expérimentale			
	Fluage	Ecrouissage	Relaxation	
	90 MPa	6 à 20 10 ⁻⁶ s ⁻¹		
	1 Essai	3 Essais		
	Identification			
	Paramètres			
	K	n	C	D
	263	6.83	1136	17

Tableau 7-2 - Récapitulatif de l'identification de la loi de comportement en compression.

7.3 Essais de flexion

7.3.1 Problématique

Les essais de flexion induisent un champ de contrainte non uniforme dans l'éprouvette. En élasticité, il existe des solutions analytiques simples pour déduire des grandeurs macroscopiques mesurées (charge et flèche) les valeurs des contraintes et des déformations en tout point. Par contre, dès qu'une non-linéarité est introduite (comme c'est le cas pour le fluage), il n'existe en général pas de solution analytique au problème. Il est alors nécessaire d'avoir recours à la simulation numérique pour identifier le comportement du matériau. Dans notre cas, nous avons utilisé le code de calcul ZéBuLon 8.2, développé au Centre des Matériaux. La démarche utilisée, schématisée sur la Figure 7.15, est dite "méthode inverse". Il s'agit dans un premier temps de choisir une forme de loi de comportement (ici nous avons utilisé la loi à écrouissage cinématique présentée en début de chapitre), puis à identifier les coefficients numériques, par méthode inverse.

Un premier jeu de paramètres est utilisé pour simuler la réponse d'un essai de flexion avec les géométries et les chargements réels. Le fléchissement simulé est ensuite comparé aux valeurs expérimentales. Si l'écart est inférieur à un niveau fixé préalablement par l'utilisateur, la démarche est stoppée. Par contre, si l'écart est trop important, l'optimiseur calcule de nouveaux paramètres jusqu'à obtenir un écart acceptable. La méthode d'optimisation automatique repose sur l'algorithme de Levenberg-Marquardt.

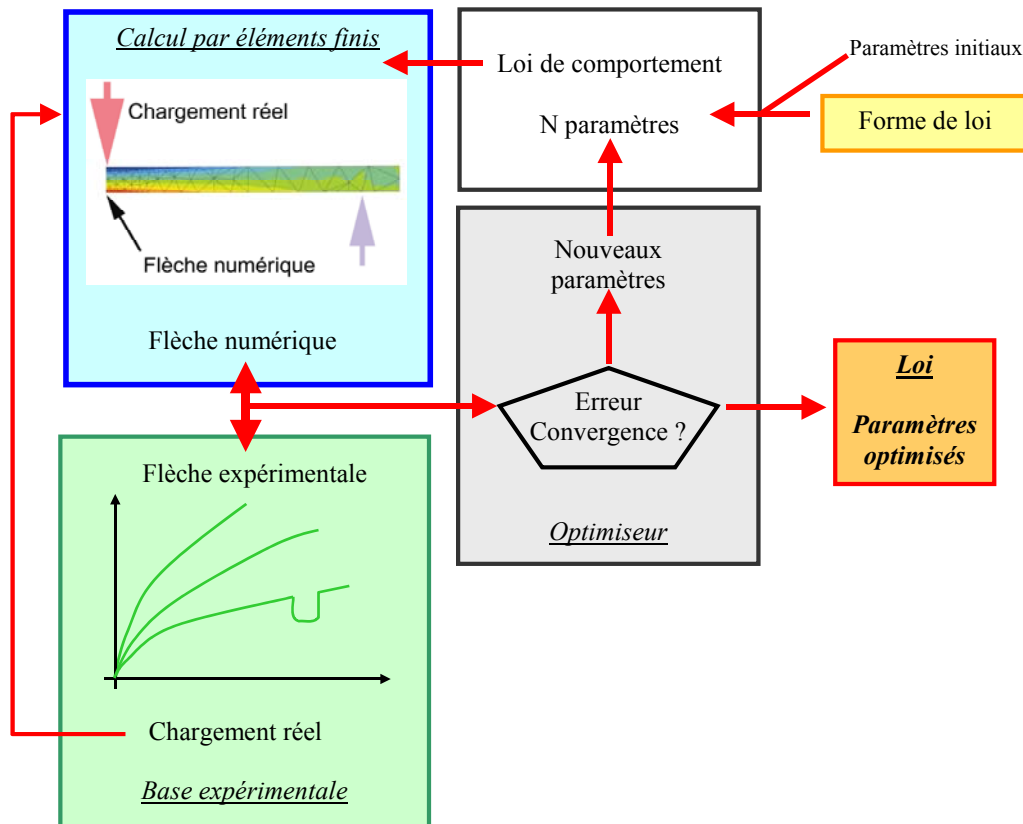


Figure 7.15 - Organigramme de la méthode d'identification d'une loi de comportement par méthode inverse.

Les premiers calculs réalisés sans prise en compte de la restauration, n'ont pas permis d'identifier un jeu de coefficients corrects : en particulier, la vitesse de fluage stationnaire est sous estimée, comme l'illustre la Figure 7.16. Le modèle sous-estime les niveaux de déformation expérimentale ; le matériau semble « s'adoucir » avec la déformation. L'addition d'un terme de restauration, nécessitant l'introduction de deux paramètres supplémentaires M et m , permet une description correcte grâce à une évanescence de l'érouissage. Ainsi en cours d'essai ce terme supplémentaire diminue la contrainte interne et augmente donc la contrainte effective $(\sigma - X)$, soit au final une accélération du fluage :

$$\dot{\underline{X}} = \frac{2}{3} C \dot{\underline{\varepsilon}}_p - D \underline{X} \dot{\nu} - \left(\frac{|\underline{X}|}{M} \right)^m \frac{\underline{X}}{J(\underline{X})}$$

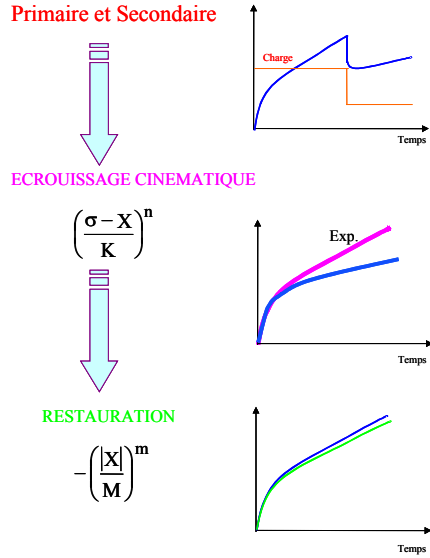


Figure 7.16 – Schéma de construction de la loi de fluage.

Le nombre de paramètres à identifier s'élève finalement à six, et les équations constitutives du fluage du matériau s'écrivent :

$$\underline{\varepsilon}_{Tot} = \underline{\varepsilon}_{Elastique} + \underline{\varepsilon}_{Inelastique}$$

$$\dot{\underline{\varepsilon}}_{Inelastique} = \dot{\underline{\varepsilon}}_p = \dot{\nu} \underline{n} \quad \text{avec} \quad \underline{n} = \frac{\delta f}{\delta \underline{\sigma}} \quad f = J(\underline{\sigma} - \underline{X}) - R_0$$

$$\dot{\nu} = \left\langle \frac{J(\underline{\sigma} - \underline{X}) - R_0}{K} \right\rangle^n$$

$$\dot{\underline{X}} = \frac{2}{3} C \dot{\underline{\varepsilon}}_p - D \underline{X} \dot{\nu} - \left(\frac{J(\underline{X})}{M} \right)^m \frac{\underline{X}}{J(\underline{X})}$$

L'influence de la température est traitée en supposant que les six coefficients dépendent de cette température. Lors des essais de flexion, les déformations élastiques, lors du chargement ou de dip tests, sont très faibles, de l'ordre de 5 μm , et ne permettent pas de réaliser une mesure correcte du module d'élasticité : nous avons donc utilisé pour ce dernier les valeurs fournies par le CEA. Enfin le seuil d'écoulement en fluage est choisi nul ; le dioxyde d'uranium pouvant fluer même sous de très faibles charges.

7.3.2 Simulation par calcul aux éléments finis

Le logiciel ZeBuLon 8.2 nous a permis de mailler l'éprouvette et de réaliser tous les calculs de simulation par la méthode des éléments finis. L'éprouvette de flexion est modélisée par un maillage 2D d'éléments triangulaires en contraintes planes. L'ensemble de ces conditions aux limites de sollicitations est repris sur la Figure 7.17. La symétrie du problème nous autorise à ne considérer qu'une moitié d'éprouvette. Ces conditions imposent également aux nœuds de l'axe de symétrie (2) un déplacement horizontal nul, suivant (1). Le blocage vertical (2) du nœud à 5 mm de l'axe sur la face inférieure correspond à un point d'appui extérieur du montage de flexion. La charge est répartie sur les éléments proches de l'axe, simulant ainsi le point d'appui supérieur. Cette répartition évite l'apparition de contraintes de contact ponctuelles élevées, n'ayant aucun sens physique, pouvant causer des problèmes de convergence de calcul. La flèche de l'éprouvette correspond au déplacement vertical, suivant (2) du nœud inférieur de l'axe de symétrie. Le maillage est plus raffiné près de l'axe car les gradients de contraintes et de déformations y sont plus importants.

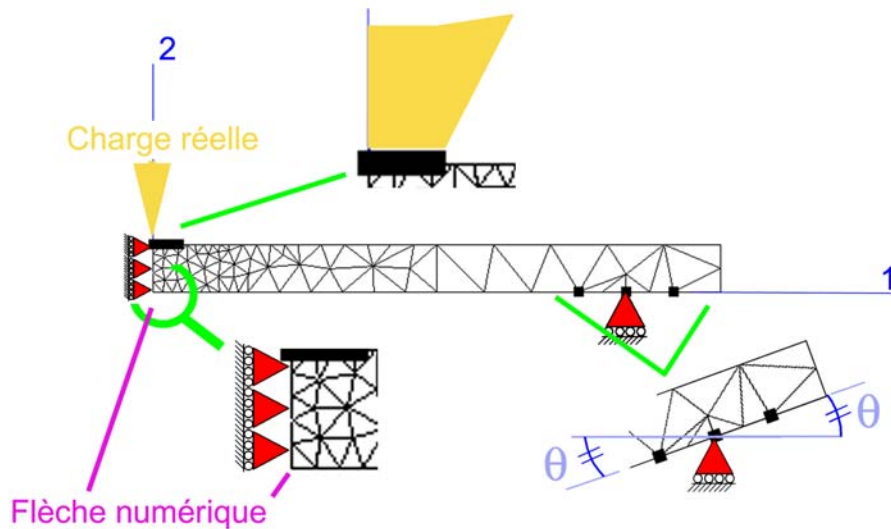


Figure 7.17 - Conditions aux limites de l'éprouvette en flexion trois points.

Les maillages utilisés sont représentés sur la Figure 7.18, pour les deux géométries d'éprouvettes utilisées (épaisseur 500 μm et 1 mm). Avant leur utilisation, ces maillages ont été validés en vérifiant qu'un raffinement supplémentaire (Figure 7.19) n'avait pas d'influence sur les résultats.

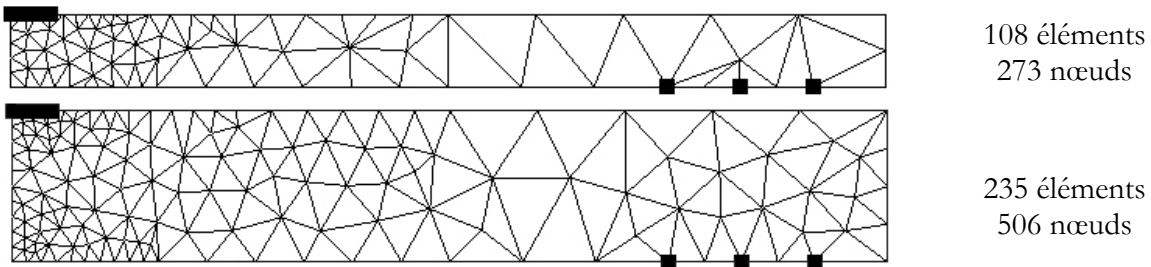


Figure 7.18 - Maillages de l'étude.

Pour chaque maillage, un essai de fluage à 1 350°C sous 60 MPa a été simulé ; les flèches calculées sont représentées sur la Figure 7.20. Les courbes obtenues sont similaires, prouvant que les maillages les plus simples, nécessitant trois fois moins de temps de calcul, sont suffisants pour obtenir des résultats valides.

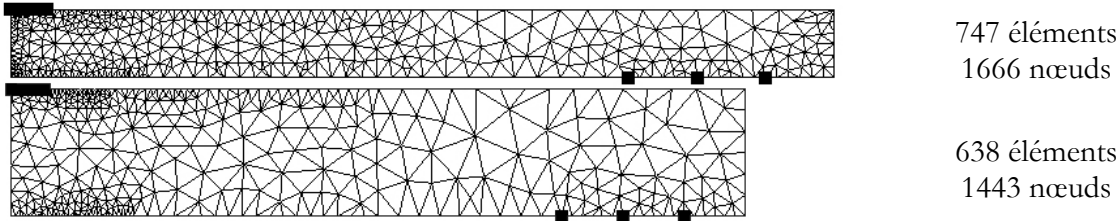


Figure 7.19 - Maillages de validation.

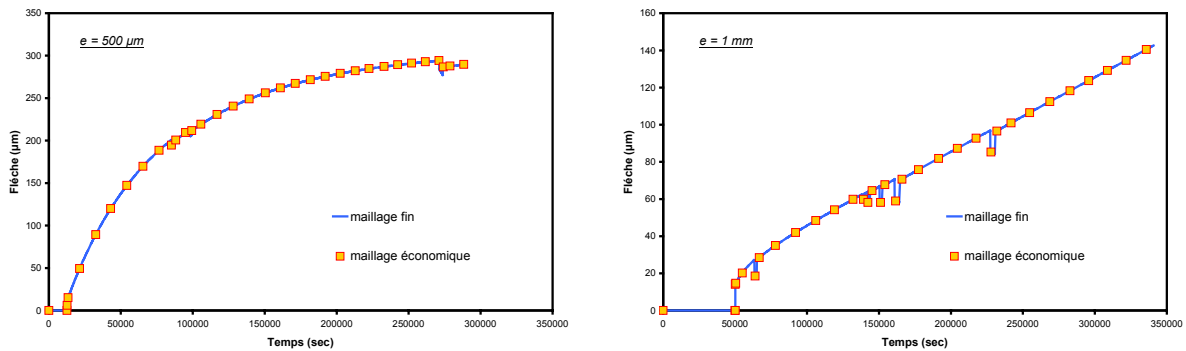


Figure 7.20 - Comportements de UO_2 à 1 350°C sous 60 MPa, flèches simulées avec différents maillages.

Pour optimiser les paramètres de notre loi, nous nous sommes dans un premier temps intéressés aux essais de fluage et dip-test réalisés à 1 350°C. Cette étape nous a permis d'appréhender l'influence de la contrainte sur le comportement mécanique du matériau. Nous avons ensuite vérifié le jeu de coefficients obtenus en simulant un essai de relaxation à 1 350°C. Ensuite nous avons quantifié l'influence de la température, en simulant divers essais de fluage entre 1 300 et 1 500°C. Toutefois, comme nous l'avons mentionné dans le chapitre précédent, notre base expérimentale reste limitée, et quelques essais ont présenté un comportement atypique. Pour conforter notre loi de comportement, des essais complémentaires, que nous n'avons pu réaliser par manque d'éprouvettes et de temps, seraient absolument nécessaires.

7.3.3 Influence de la contrainte, à 1 350°C

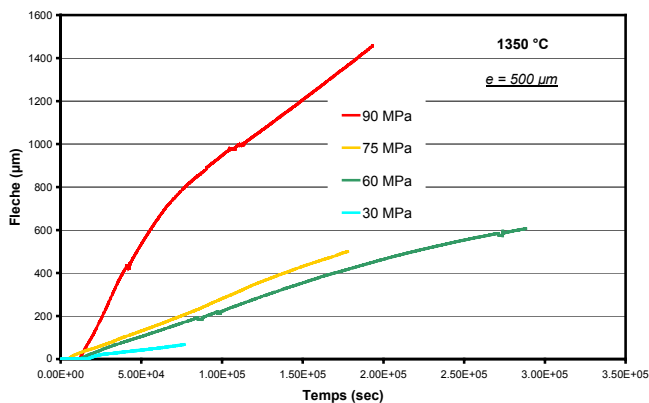


Figure 7.21 - Fluage de UO_2 en flexion à 1 350°C.

Comme nous l'avons vu au chapitre précédent, nous avons testé l'influence de la contrainte sur le fluage du dioxyde d'uranium à 1 350°C. Les essais ont été réalisés sur des éprouvettes de 500 μm d'épaisseur, et les résultats obtenus sont résumés sur la Figure 7.21. L'identification par méthode inverse nous a fourni un jeu de 6 paramètres, répertoriés dans le Tableau 7-3. Pour mémoire, rappelons que trois autres paramètres sont nécessaires à la description complète du comportement mécanique : les constantes d'élasticité E et ν , et la limite d'écoulement R_0 , choisie nulle.

Loi de comportement de UO ₂ à 1 350°C				$e = 500 \mu\text{m}$
Fluage	Loi puissance type Norton	K	12 231 133	
		n	1.41	
Contrainte interne	Ecrouissage cinématique	C	49 500	
		D	0.5	
	Restauration	m	6.3	
		M	815	

Tableau 7-3 - Paramètres de la loi de comportement à 1 350°C.

Les résultats donnés sur la Figure 7.22 permettent de vérifier immédiatement après le chargement que le champ des contraintes est bien celui prévu par les lois de l'élasticité. Le fluage provoque ensuite une redistribution des contraintes dans l'éprouvette au cours de l'essai ; la contrainte maximale diminue comme l'a remarqué (Timoshenko 1930).

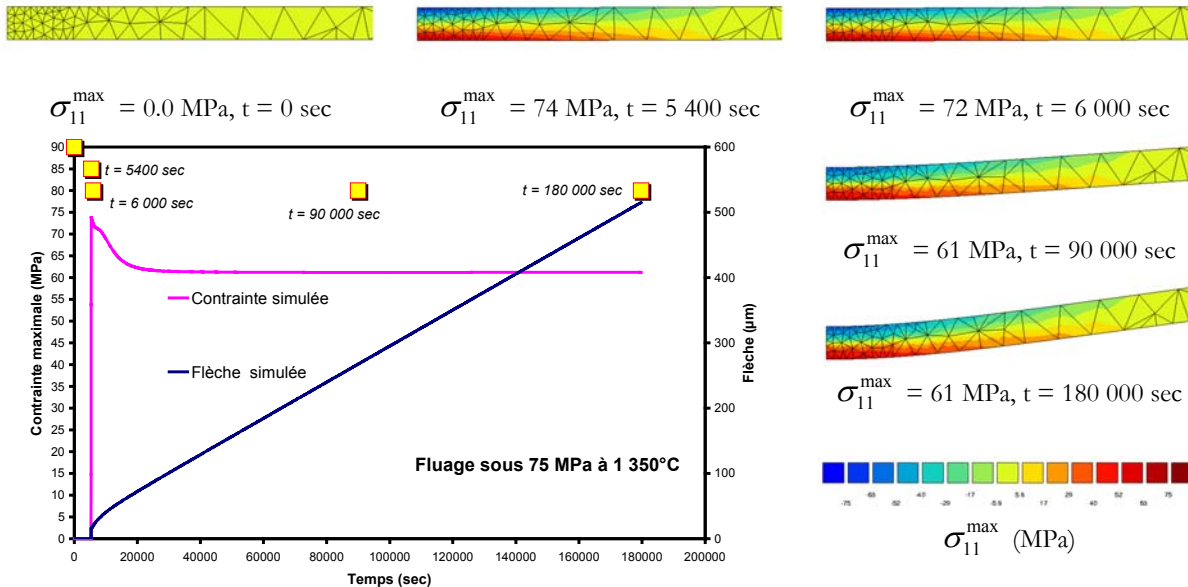


Figure 7.22 - Evolution de la contrainte de fluage sous 75 MPa à 1 350°C au cours du temps.

Les confrontations modèle-expériences sont résumées sur la Figure 7.23. Sur ces différentes courbes un relativement bon accord est obtenu sur le fluage stationnaire. Si l'accord est satisfaisant pour les contraintes intermédiaires, il l'est moins pour les essais réalisés à 30 et 90 MPa. Plus qu'à une imperfection du modèle, cette remarque est sans doute attribuable à la dispersion initiale de nos résultats d'essais, associée à la petitesse des déformations mesurées. Le manque d'éprouvettes et de temps ne nous a malheureusement pas permis de multiplier les essais en vue de consolider le modèle.

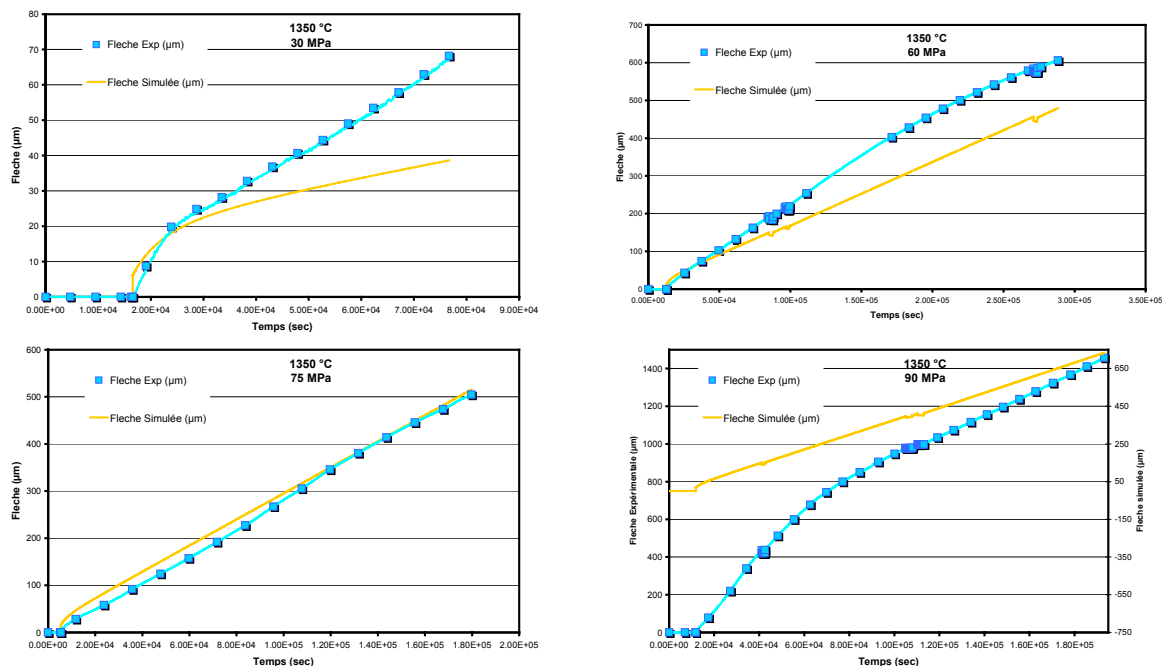


Figure 7.23 - Essais de fluage simulés à 1 350°C.

Notre loi permet en outre de rendre compte du comportement du dioxyde d'uranium lors de dip tests. La Figure 7.24 représente les flèches simulées à 1 350°C sous 60 MPa. Le modèle est en bon accord avec l'expérience, et la loi décrit correctement les phénomènes de recouvrance observés expérimentalement.

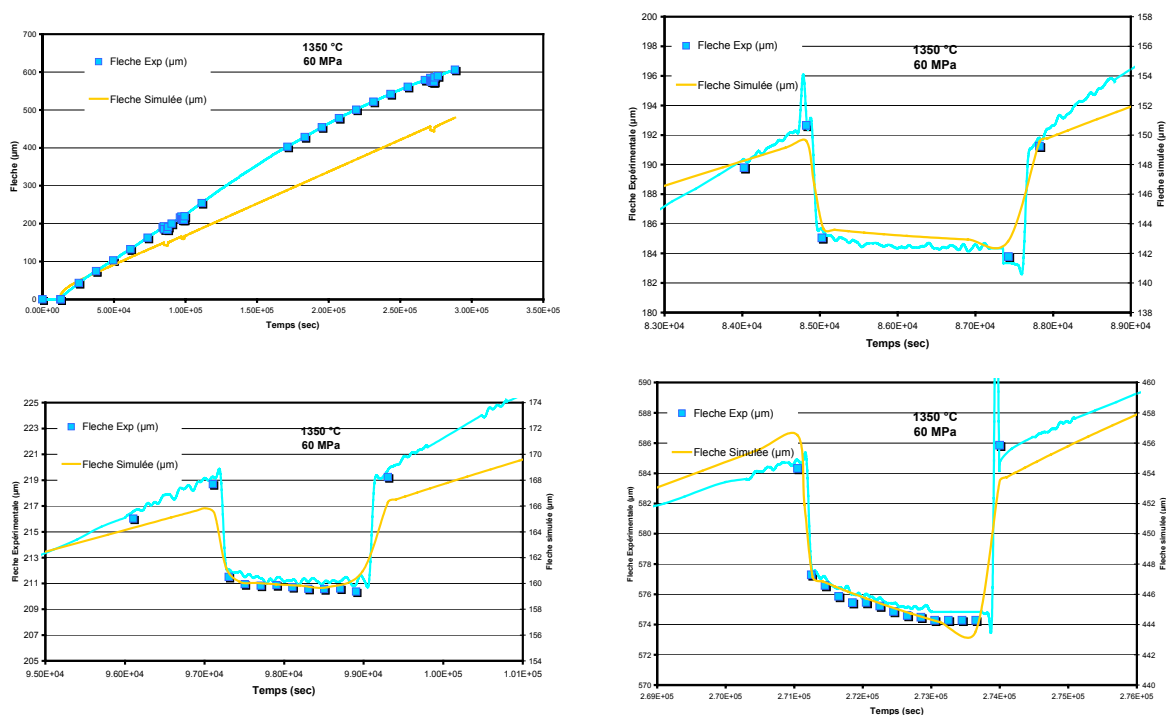


Figure 7.24 - Fluage sous 60 MPa à 1 350°C, simulation des dips tests.

Nous avons validé notre loi de comportement en comparant le modèle à l'expérience pour un essai de relaxation multiple. Cette confrontation est illustrée par la Figure 7.25. Le chargement élastique initial se traduit par un décalage entre les deux réponses : rappelons que les mesures de flèche réalisées dans ces conditions sont sujettes à caution. L'accord est ensuite satisfaisant même si l'écart entre flèches simulée et numérique a tendance à augmenter légèrement au cours de l'essai.

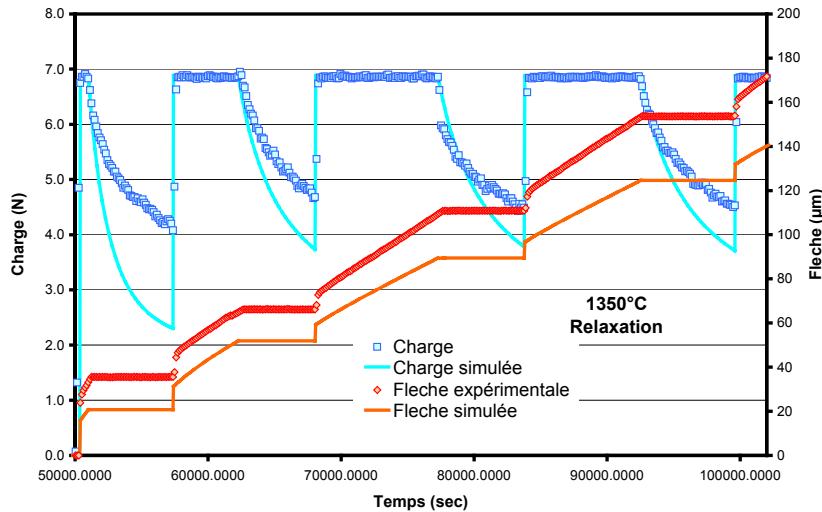


Figure 7.25 - Essai de relaxations multiples à 1 350°C.

7.3.4 Evolution avec la température

Une identification analogue a été réalisée sur la base d'essais de fluage sous 75 MPa ; l'ensemble des données expérimentales utilisées est résumé sur la Figure 7.26.

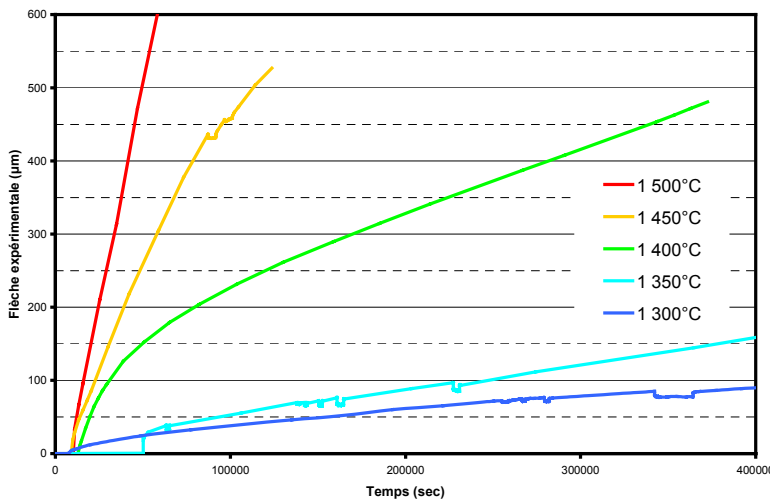


Figure 7.26 - Fluage de UO_2 en flexion sous 75 MPa à différentes températures.

Le Tableau 7-4 regroupe les valeurs numériques obtenues. Les essais anisothermes n'ont pas mis en évidence de déformation significative en dessous de 1 250°C ; aussi les valeurs des paramètres K et n sont choisies de telle manière à « bloquer » le fluage en dessous de cette valeur. Les confrontations modèle-expériences sont regroupées dans les graphiques de la Figure 7.27 à la Figure 7.29. La modélisation donne des bons résultats, à la fois pour décrire le fluage stationnaire et les phénomènes de recouvrance lors des dip tests. Les Figure 7.29 et Figure 2.29 illustrent deux exemples à 1 350°C et 1 450°C. A 1 400°C, le fluage primaire observé expérimentalement n'est pas reproduit par le modèle.

Loi de comportement de UO ₂		$\epsilon = 1 \text{ mm}$		
Fluage	<i>Loi puissance type Norton</i>	Température		
		K	1 250°C	999
			1 300°C	16 509 506
			1 350°C	12 231 133
			1 400°C	12 954 988
			1 450°C	11 694 740
			1 500°C	11 592 168
		n	1 250°C	999
			1 300°C	1,55
			1 350°C	1,41
			1 400°C	1,33
			1 450°C	1,1
			1 500°C	1,11
Contrainte interne	<i>Ecrouissage cinématique</i>	C	1 250°C	51 000
			1 300°C	51 018
			1 350°C	49 500
			1 400°C	49 285
			1 450°C	49 500
			1 500°C	49 497
		D	1 250°C	0,5
			1 350°C	0,5
			1 500°C	0,5
	<i>Restauration</i>	M	1 250°C	1 300
			1 300°C	1 285
			1 350°C	815
			1 400°C	743
			1 450°C	701
			1 500°C	654
		m	1 250°C	8,4
			1 300°C	7,38
		m	1 350°C	6,3
			1 400°C	5,77
			1 450°C	4,92
			1 500°C	4,25

Tableau 7-4 - Paramètres de la loi de comportement en fonction de la température.

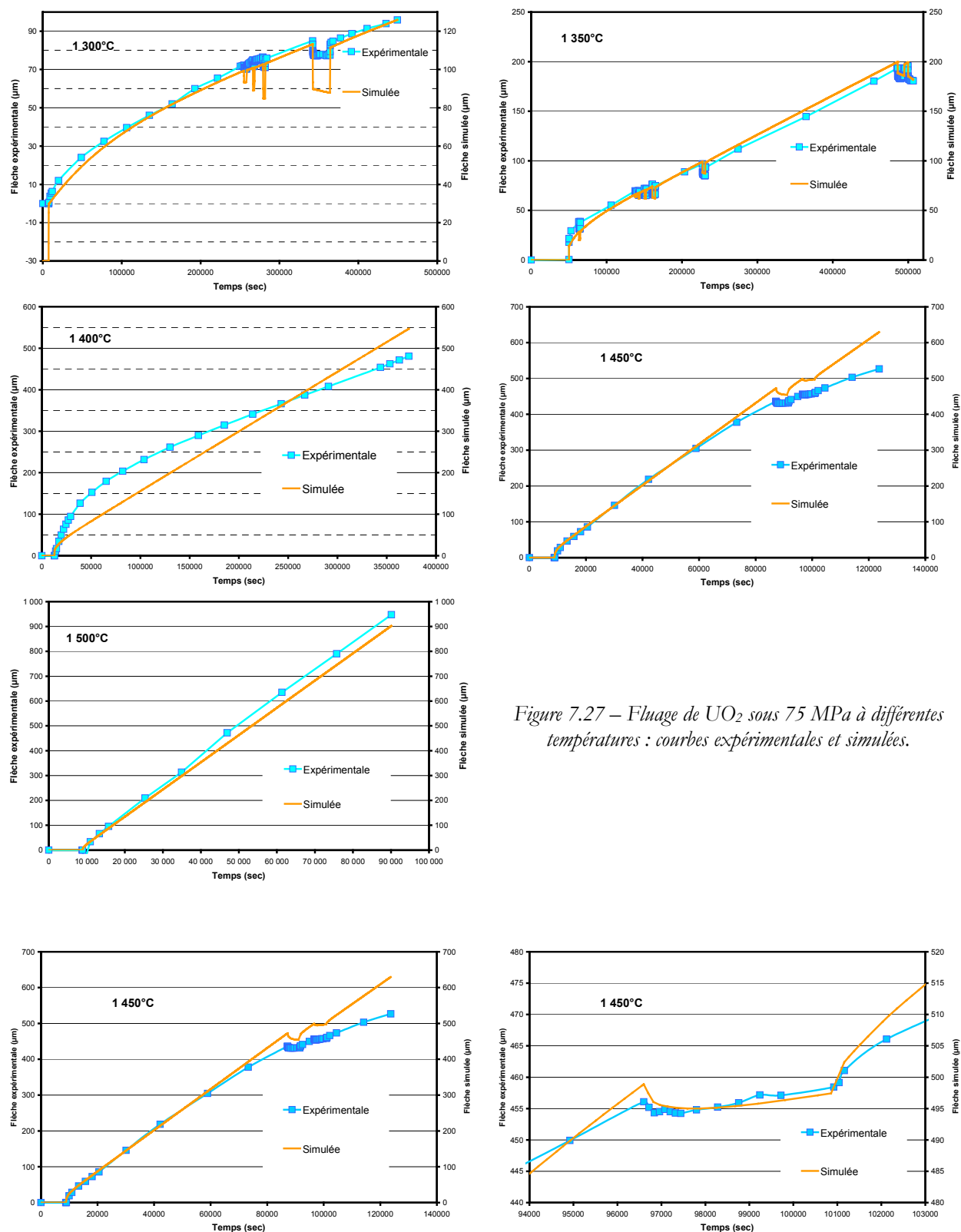


Figure 7.27 – Fluage de UO_2 sous 75 MPa à différentes températures : courbes expérimentales et simulées.

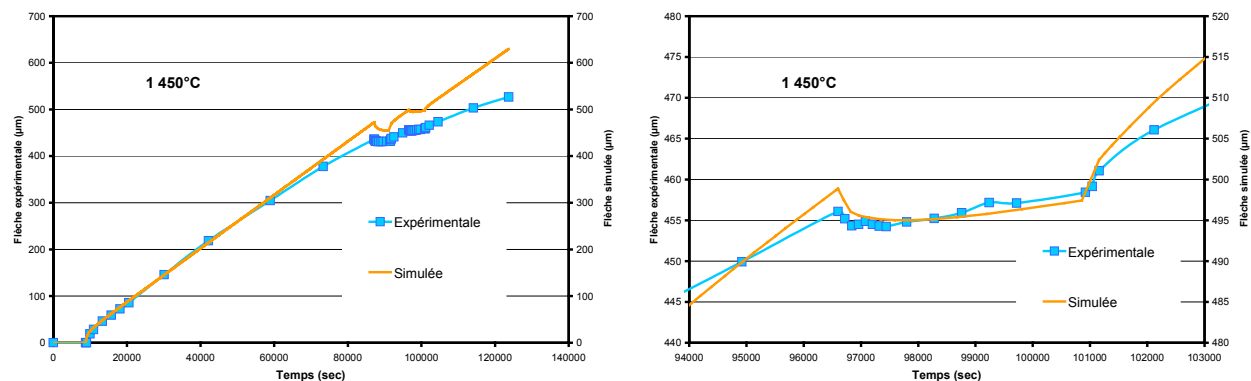


Figure 7.28 - Fluage sous 75 MPa à 1 450°C, simulation d'un dip-test-test.

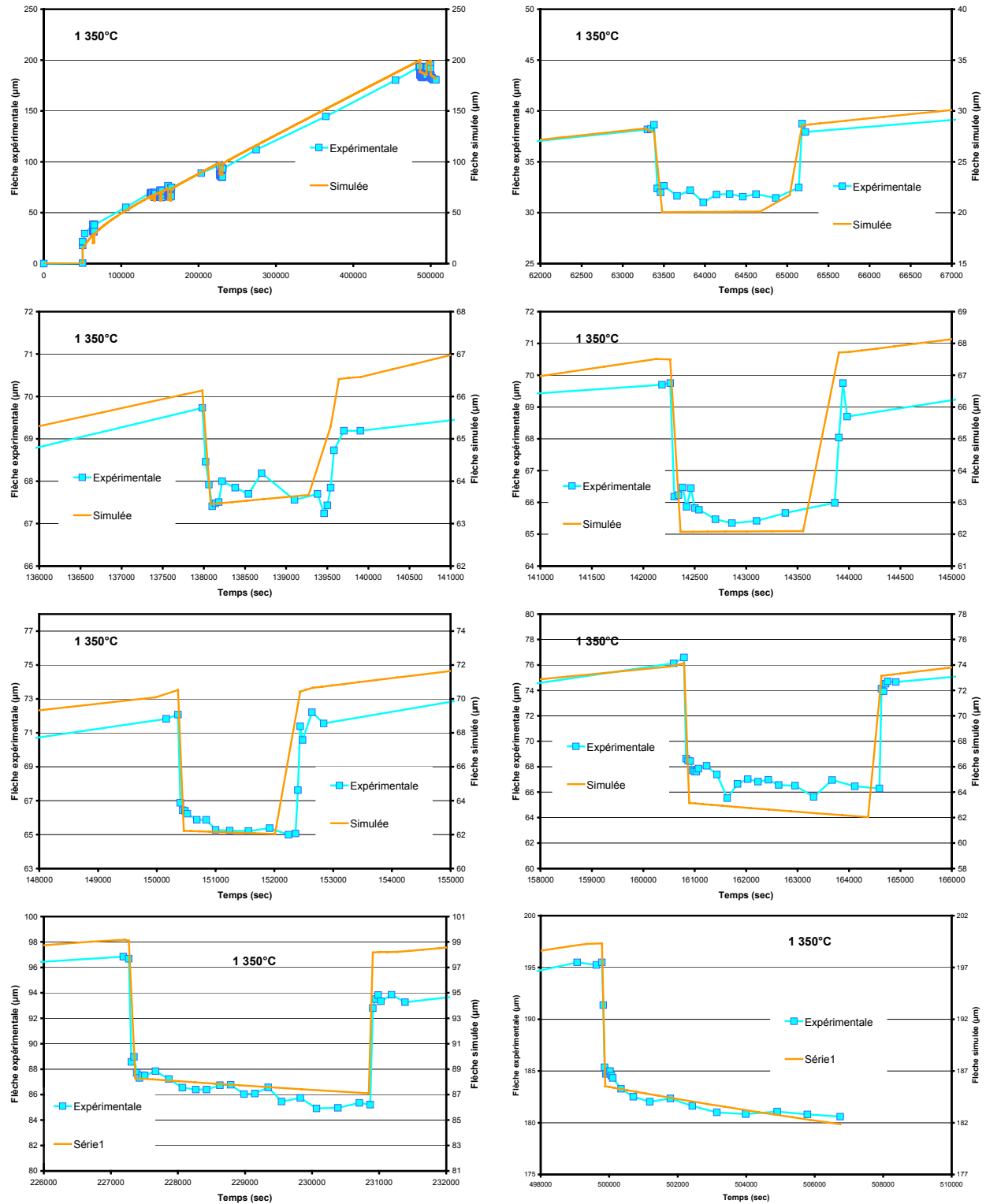


Figure 7.29 - Fluage sous 75 MPa à 1 350°C, simulation des dip tests.

7.3.5 Validation de la loi

L'ensemble des paramètres en fonction de la température permet de décrire correctement les courbes de fluage. Nous avons vérifié la pertinence de cette loi sur des essais de relaxation effectués à 1 500°C. Les résultats du calcul sont confrontés à l'expérience sur la Figure 7.30. On constate un très bon accord entre les charges expérimentales et simulées.

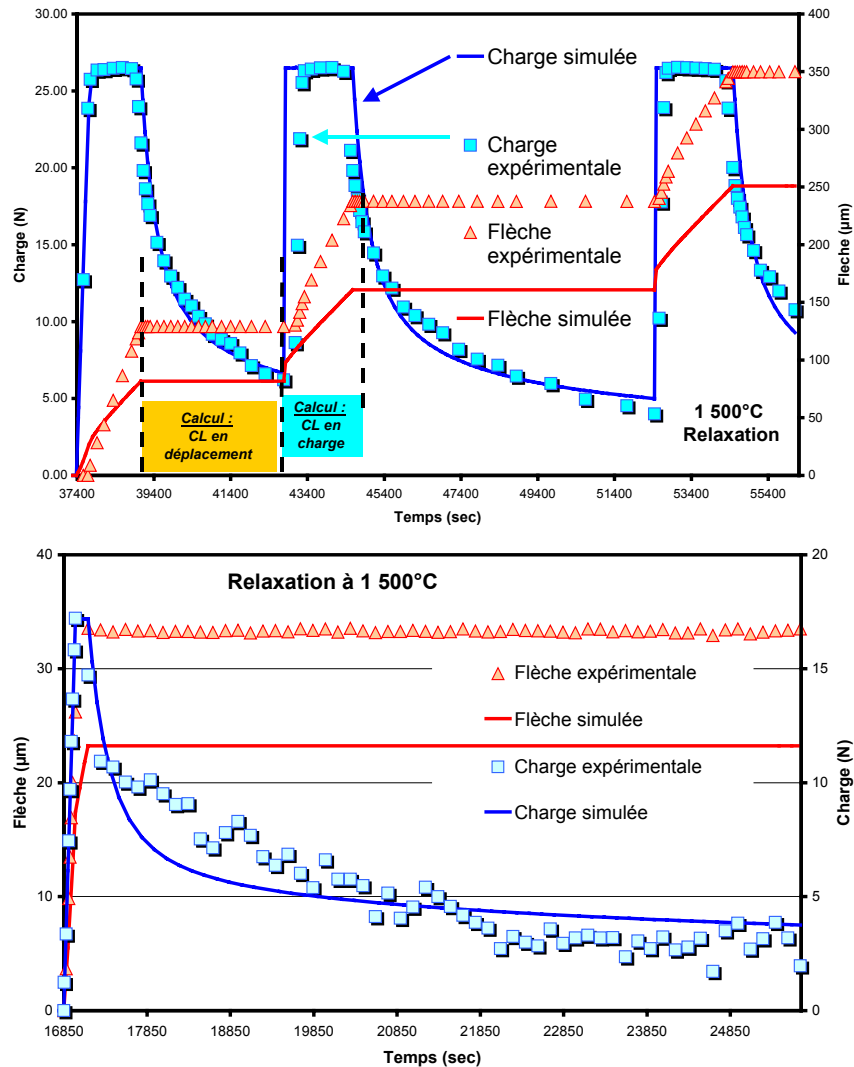


Figure 7.30 - Simulation d'essais de relaxation multiple à 1 500°C.

Tous les essais exploités jusqu'à présent pour l'établissement et la validation de notre loi étant isothermes, il nous reste donc à vérifier sa validité en conditions anisothermes, cas des transitoires de puissance en réacteur. Pour cela, les essais de fluage anisothermes ont été simulés ; les réponses numériques sont comparées aux données expérimentales sur la Figure 7.31 : l'accord observé est excellent.

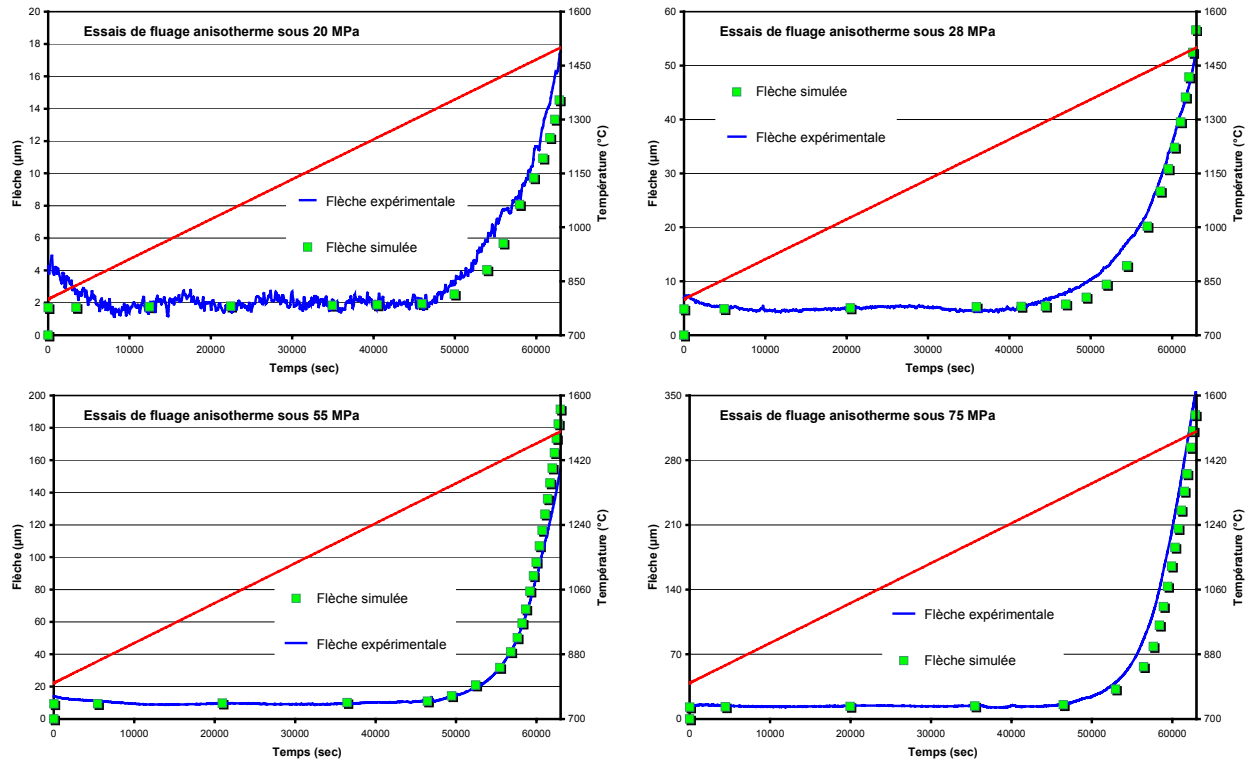
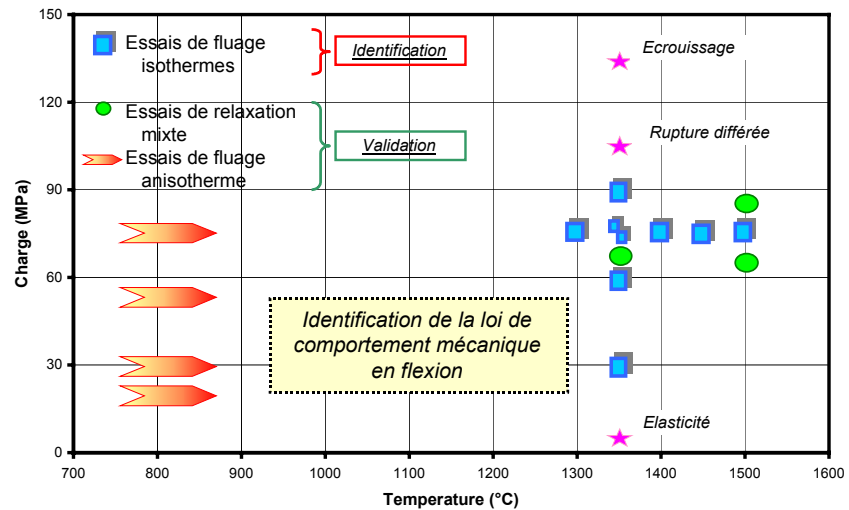


Figure 7.31 - Simulation des essais de fluage anisotherme.

Pour récapituler, notre loi a été identifiée, en flexion trois points, à partir d'essais de fluage et de dip tests, entre 1 300 et 1 500°C, pour des contraintes maximales de 90 MPa. Des essais de validation, en relaxation et en fluage anisotherme, ont permis de vérifier sa pertinence. Cette démarche est reportée sur la Figure 7.32, dans un espace charge-température. Cette loi est adaptée pour décrire le comportement mécanique du combustible sur une large plage de température, allant de 800 à 1 500°C ; et pour des contraintes maximales de fluage de 90 MPa, soit une vitesse de déformation maximale stationnaire de $8 \cdot 10^{-5} \text{ \%} \cdot \text{s}^{-1}$.

Figure 7.32 - Identification de la loi de comportement mécanique de UO_2 en flexion.



7.4 Comparaison des deux lois

7.4.1 Deux domaines de comportements

Avant de conclure cette partie, nous avons voulu resituer notre loi de comportement mécanique de UO_2 . Nous sommes partis d'une même forme de loi, que nous avons identifiée sur deux types d'essais, en compression et flexion trois points, et dans des domaines de sollicitations thermomécaniques différents ; ceux-ci sont représentés schématiquement sur la Figure 7.33, dans un espace contrainte-vitesse de déformation, utilisé pour comparer des essais de fluage.

La loi identifiée en flexion correspond à la zone des basses contraintes, des faibles vitesses de déformation et des basses températures. Cette zone est assimilable au domaine dit des faibles contraintes dans l'interprétation du fluage stationnaire, où les déformations s'opèrent par mécanismes diffusionnels.

La loi en compression est identifiée à plus haute température. Les résultats d'essais mis à notre disposition par le CEA se situent dans le domaine dit des fortes contraintes, avec des vitesses élevées, dans lequel la déformation est guidée par le mouvement des dislocations.

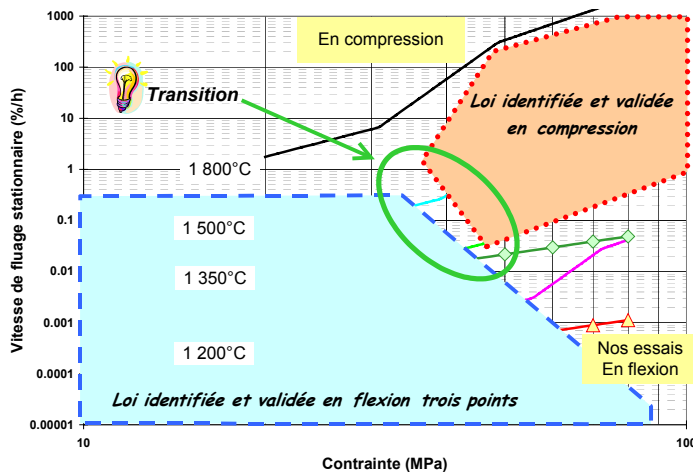


Figure 7.33 - Domaine d'identification des lois de comportement mécanique de UO_2 .

Une question émerge de ce constat : est-il possible de décrire le comportement de UO_2 sur l'ensemble du domaine avec notre loi identifiée en flexion ? Pour y répondre, intéressons-nous à la zone « charnière », où les domaines de validité semblent se superposer.

7.4.2 Zone de transition : essais de fluage

Nous avons choisi de simuler des essais de fluage en compression à 1 500°C, où la base expérimentale est plus riche. Une comparaison des domaines d'identification des deux lois est faite sur la Figure 7.34, dans l'espace contrainte appliquée et vitesse de déformation résultante. Alors les essais de fluage en compression à plus faibles contraintes, sous 30 et 45 MPa, sont proches des sollicitations considérées en flexion.

Les essais de compression choisis sont simulés par éléments finis. Les conditions aux limites et l'aspect global des résultats sont décrites dans la Figure 7.36. Le maillage utilisé est axisymétrique et représente la moitié supérieure d'une pastille. Une configuration laisse libre de mouvements les trois surfaces limites, ce qui revient à ne pas tenir compte des frottements. Dans ces conditions l'état des contraintes est uniformément réparti dans la pastille. Le cisaillement est nul. L'autre situation pose un encastrement sur la face supérieure de la pastille pour représenter les forces de frottement

des appuis. Alors l'état des contraintes est plus complexe dans la céramique et est loin d'être uniforme. Il commence à apparaître les cônes de frottement, ou de compression, délimités par de forts taux de cisaillement. En réalité la pastille se trouve dans un état intermédiaire entre ces deux configurations.

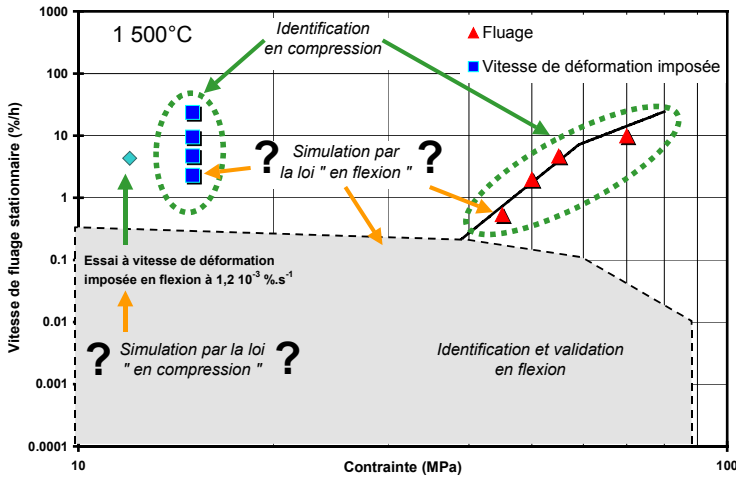


Figure 7.34 - Domaines d'identification et de validation des lois de comportements de UO_2 , sur la base expérimentale en compression.

Les résultats de la simulation montrent que lorsqu'il y a encastrement les déformations résultantes sont plus faibles. De plus en conditions libres, les valeurs numériques sont plus proches des valeurs expérimentales puisque, par hypothèse même, l'identification de la loi en compression s'est faite sur un élément de volume, ne tenant pas compte des frottements notamment.

Ces deux conditions donnent toutefois des résultats analogues. Par la suite nous exposerons uniquement les calculs avec des conditions aux limites libres.

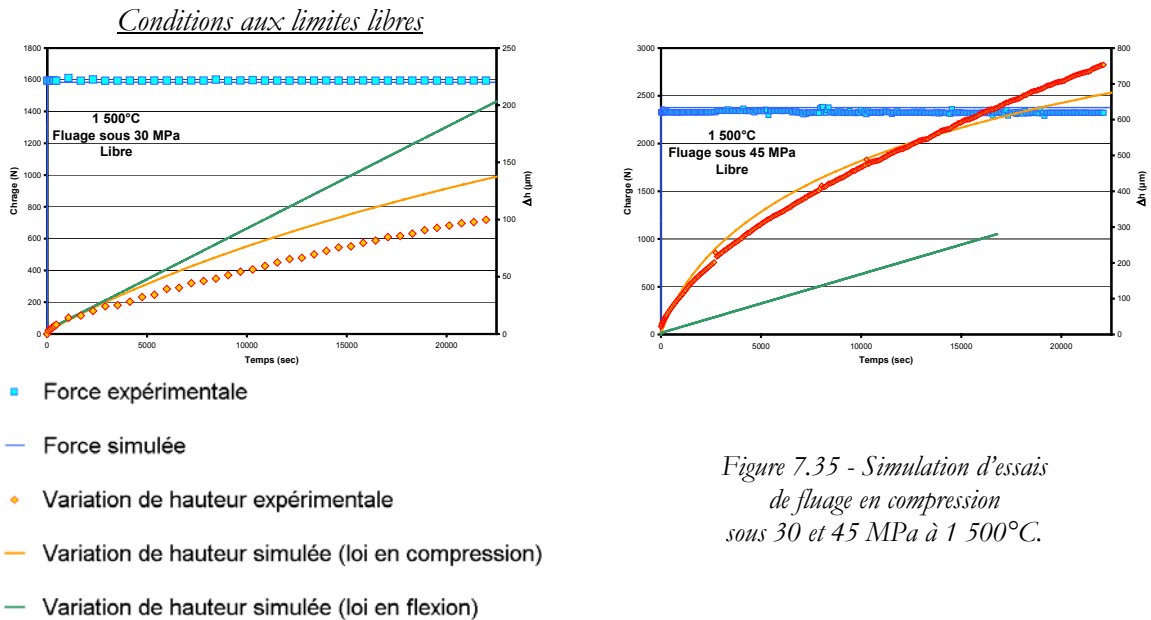


Figure 7.35 - Simulation d'essais de fluage en compression sous 30 et 45 MPa à 1 500°C.

La Figure 7.35 présente les résultats numériques de la simulation d'essais de fluage sous 30 et 45 MPa. Ainsi pour les fortes contraintes, la loi identifiée en compression est beaucoup mieux adaptée pour décrire l'expérience. Par contre sous 30 MPa, les deux lois sont en accord pour les premiers stades, jusqu'à environ 40 μm , soit 0,3% de déformations.

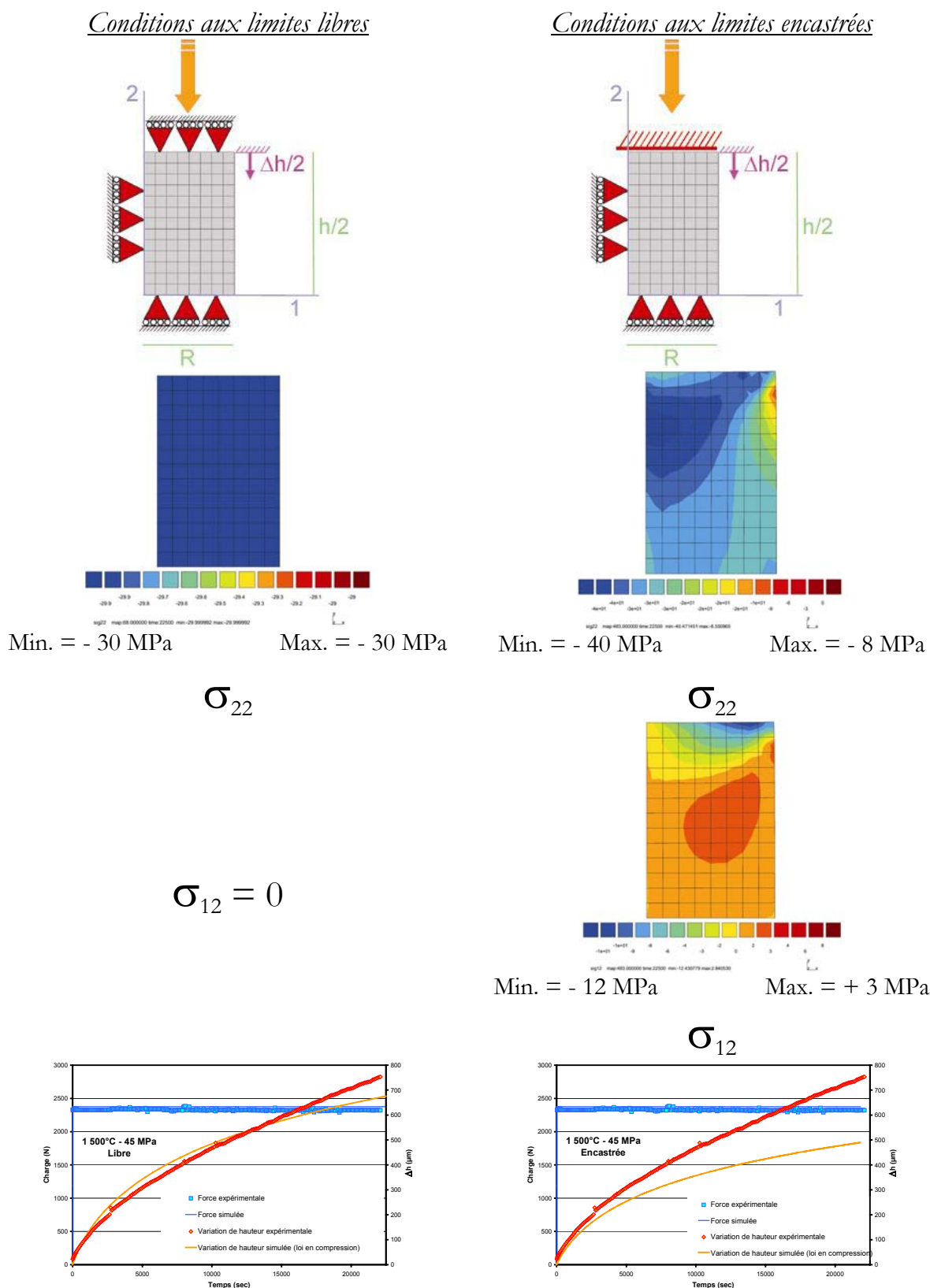


Figure 7.36 - Conditions de simulation de l'essai de compression avec des conditions aux limites libres ou encastrées : essai de fluage à 1 500°C sous 30 MPa.

7.4.3 Essais à vitesses de déformation imposée

Sur la Figure 7.34 sont également représentés des essais à vitesses de déformation imposées comparables en compression et en flexion.

Un essai à vitesse de déformation imposée en compression est simulé. Sur la Figure 7.37 sont tracées les courbes de chargement. La loi de flexion permet de décrire alors assez correctement les niveaux de contrainte aux faibles déformations, jusque $150\text{ }\mu\text{m}$, soit plus de 1% de déformation. Cependant cette loi ne traduit pas le durcissement du matériau ; elle prédit un palier en contrainte.

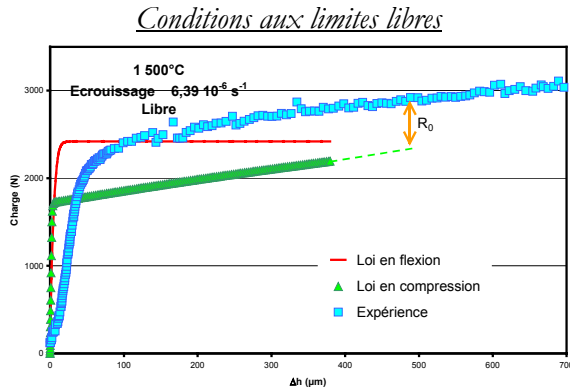


Figure 7.37 - Simulation d'essai de compression à vitesse de déformation imposée à 1500°C .

Pour simuler l'essai d'écoulement en flexion à 1350°C , il faut, dans un premier temps, extrapoler les coefficients de loi en compression ; les valeurs utilisées sont représentées graphiquement sur la Figure 7.38. Cette méthode certes empirique a été utilisée avec succès lors de la validation de ces paramètres sur un essai de relaxation à 1470°C (dans le paragraphe 7.2.3, page 142) en compression.

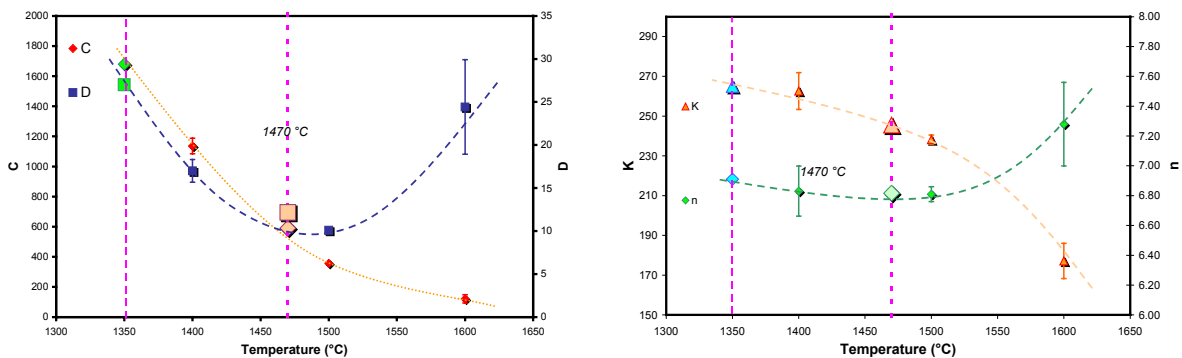


Figure 7.38 – Extrapolation à 1350°C des coefficients de la loi identifiée en compression.

Sur la Figure 7.39, cet essai de flexion à vitesse de déformation imposée à 1350°C sur UO_2 est simulé. Ce calcul est mené en utilisant les deux lois identifiées précédemment. La simulation est calculée en imposant une vitesse de déformation de $1,2 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$.

Alors, sur la Figure 7.39, il y a rapidement une divergence entre la force simulée à l'aide de la loi de comportement « en flexion ». Cette loi peut décrire les premiers temps de l'essai, jusque pour une flèche de $40\text{ }\mu\text{m}$ environ. A ces vitesses de sollicitation élevées, notre loi identifiée en flexion n'est clairement pas prédictive. Par contre sur ce même graphique, la loi identifiée en compression

prédit nettement mieux le comportement du combustible. Il y a une sous-estimation de la charge, mais cela peut être du à une mauvaise valeur du seuil d'écoulement du matériau.

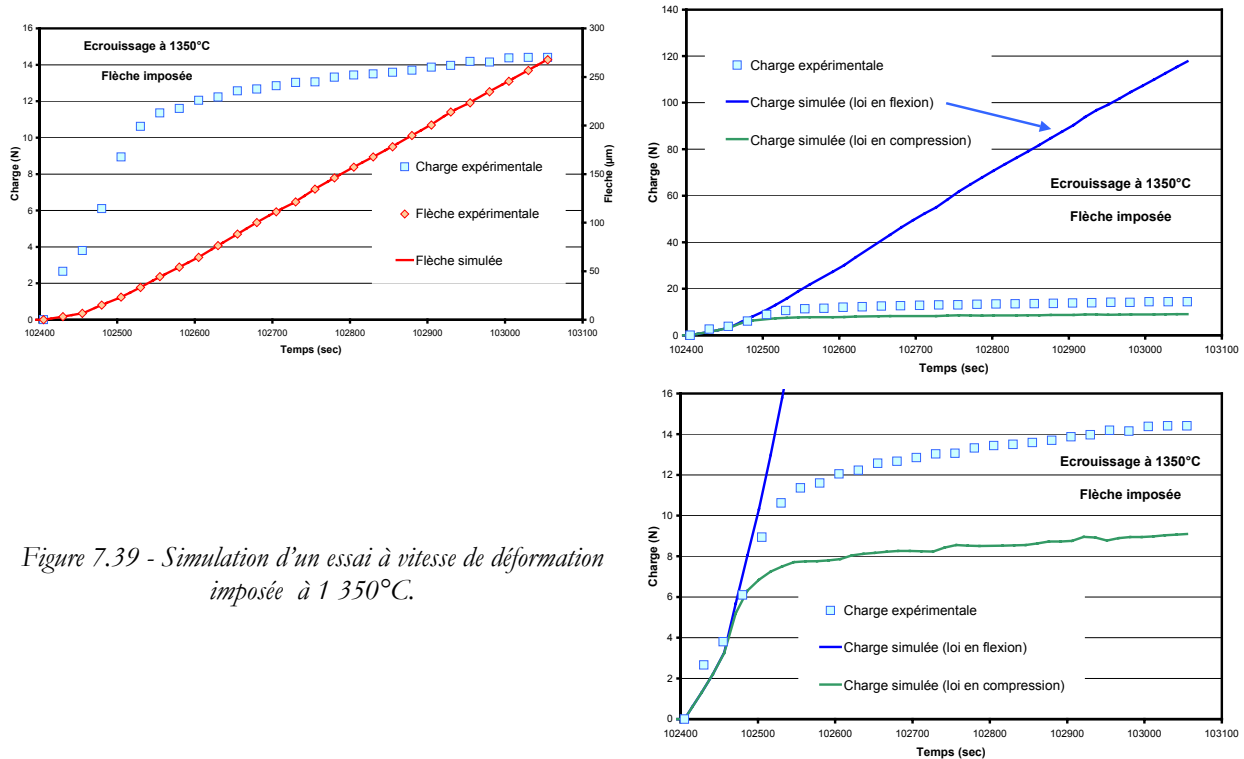


Figure 7.39 - Simulation d'un essai à vitesse de déformation imposée à 1350°C.

Ces essais simulés montrent que notre loi permet de décrire le fluage du dioxyde d'uranium dans le domaine dit des faibles contraintes, en flexion ou en compression. Par contre elle n'est clairement pas adaptée pour décrire les sollicitations mécaniques entraînant des fortes déformations et vitesses de déformation élevées, en fluage ou en test d'écrouissage. Nous manquons de données pour étendre cette loi vers le domaine des fortes contraintes, notamment en ce qui concerne les mécanismes de déformation, d'endommagement éventuel et de dissymétrie de comportement.

7.5 Conclusions

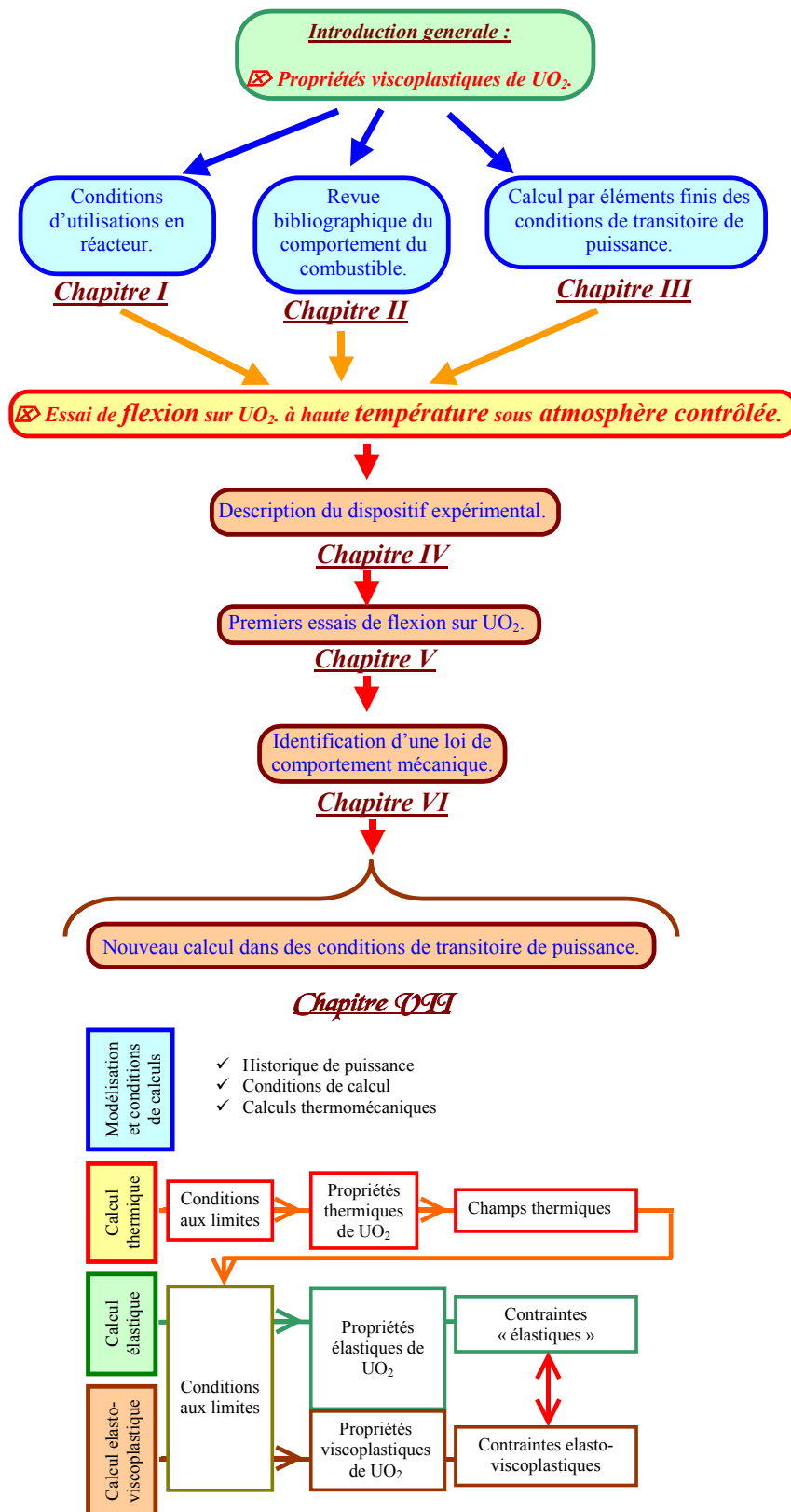
Ce chapitre avait pour but de modéliser le comportement thermomécanique du dioxyde d'uranium issu d'un lot B. Pour cela nous nous sommes servis de l'approche thermomécanique des milieux continus de Lemaître et Chaboche. L'introduction de variables internes dans la loi correspondant à un écrouissage cinématique du matériau, a permis de décrire les deux premiers stades du fluage et les phénomènes de recouvrance présentés par la céramique. En effet il était hors de question, ici, de développer une loi complexe tenant compte d'un maximum de caractéristiques du matériau, telle que la microstructure. D'une part nous disposons d'éprouvettes issues du seul lot B, il nous ainsi est impossible de décrire l'influence des différentes caractéristiques microstructurales. D'autre part ce genre de loi est actuellement en développement au CEA. La loi que nous avons choisi d'utiliser est assez simple avec un minimum de paramètres (6), tout en étant capable de décrire les phénomènes que nous avons mis en évidence lors de nos essais (fluages primaire et stationnaire, recouvrance lors des dip tests).

Tout d'abord, une première identification uniaxiale, plus intuitive, a été menée sur des essais de compression réalisés aux CEA. Les paramètres calculés décrivent correctement des essais de fluage entre 1 400 et 1 600°C pour des contraintes appliquées jusqu'à 90 MPa. Ce jeu de coefficients permet également de simuler des essais de compression à vitesse de déformation imposée entre 5 et $50 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$. Enfin cette loi de compression a été validée sur un essai de relaxation.

Ensuite nous nous sommes intéressés aux essais de flexion. Ce type de test est plus complexe et introduit un champ de contrainte non uniforme dans la section de l'éprouvette. Aussi, pour identifier une loi de comportement, il est nécessaire d'avoir recours à une méthode inverse par calcul aux éléments finis. Les maillages et les simulations ont été réalisées avec le code ZéBuLon 8.2. Pour simuler correctement le fluage en flexion, nous avons dû introduire, en plus de l'écrouissage cinématique, un terme de restauration. Au total 6 paramètres ont été identifiés en fonction de la température. Nous avons obtenu une loi fiable, capable de décrire des essais de fluage en flexion jusque 90 MPa entre 1 300 et 1 500°C. Les coefficients ont été validés en simulant des essais de relaxations multiples à température fixée. Puis les essais de fluage anisothermes ont été correctement simulés. Notre loi identifiée en flexion est donc assez robuste : elle est capable de décrire le comportement mécanique du dioxyde d'uranium sur une large plage de température, allant de 800 à 1 500°C, pour des contraintes maximales de fluage de 90 MPa, soit une vitesse de déformation stationnaire de $8 \cdot 10^{-7} \text{ s}^{-1}$. Il est toutefois important de noter que la fiabilité de cette loi est limitée par la faible base expérimentale dont nous avons disposée, particulièrement en regard de la dispersion expérimentale observée probablement due aux faibles déformations mesurées.

8 Simulation d'une rampe de puissance





8	SIMULATION D'UNE RAMPE DE PUISSANCE
8.1	CHOIX DE MODELISATION ET CONDITIONS DE CALCUL
8.1.1	Historique de puissance
8.1.2	Maillage
8.1.3	Calculs thermomécaniques
8.2	CALCUL THERMIQUE
8.2.1	Conditions aux limites
8.2.2	Propriétés thermiques du matériau
8.2.3	Champ thermique
8.3	CALCUL MECANIQUE EN ELASTICITE
8.3.1	Conditions aux limites du calcul
8.3.2	Propriétés élastiques du dioxyde d'uranium
8.3.3	Contraintes dans le combustible
8.4	CALCUL MECANIQUE EN ELASTO-VISCOPLASTICITE
8.4.1	Propriétés mécaniques de UO_2
8.4.2	Sollicitations en transitoire de puissance : loi élasto-viscoplastique
8.4.3	Comparaison avec les calculs METEOR
8.5	CONCLUSION

Nous disposons maintenant d'une loi capable de décrire les essais de flexion, avec des états de traction et de compression, sur des éprouvettes de dioxyde d'uranium. Notre loi identifiée en flexion est assez fiable pour prédire le comportement mécanique du combustible sur une large plage de température, allant de 800 à 1 500°C ; et pour des contraintes maximales de fluage de 90 MPa, soit une vitesse de déformation stationnaire de $8 \cdot 10^{-7} \text{ s}^{-1}$.

Nous allons, dans ce chapitre, utiliser ce modèle pour décrire le comportement d'une pastille lors d'une rampe de puissance.

8.1 Choix de modélisation et conditions de calcul

L'objectif de cette simulation est d'effectuer une simulation assez simple, nécessitant un temps de calcul court sur ZéBuLon, tout en étant aussi complète et réaliste que possible. Pour cela nous nous basons sur la revue bibliographique et les calculs effectués par CYRANO3 ou METEOR que nous avons décrits au début de ce mémoire.

Le combustible est supposé suivre la loi que nous avons identifiée sur des barreaux issus d'un Lot B. Ce dernier, s'il sert de référence pour les essais mécaniques réalisés dans les laboratoires du CEA, ne correspond pas tout à fait aux combustibles utilisés en réacteur. D'autre part notre loi ne tient pas compte des paramètres tels que la stœchiométrie, la chimie, l'irradiation de UO_2 et de leurs évolutions dans le cœur du réacteur. Nous considérerons donc un combustible neuf, dont les propriétés mécaniques ne sont pas affectées par l'irradiation au sens large. De même le fluage d'irradiation ou le gonflement de l'oxyde ne seront pas considérés. Enfin rappelons que la loi de comportement que nous avons identifiée lors de cette thèse n'est à priori applicable que dans des conditions de transitoire de puissance. En fait ce calcul a pour but de démontrer la faisabilité de simulations numériques de transitoires de puissance. De plus il permettra d'affiner les sollicitations thermomécaniques subies par le combustible dans ces conditions.

8.1.1 Historique de puissance

L'historique de puissance retenu est celui d'un crayon IΦ4 (5108 GRA5 2 CY IΦ4/4 OSIRIS), soit les mêmes conditions que celles utilisées lors du calcul CYRANO3, au troisième chapitre. Ce crayon est irradié durant deux cycles de base. Une fois conditionné, il subit une rampe rapide de puissance. En fait pour ce calcul, seule la partie décrivant le séjour dans le réacteur OSIRIS nous est nécessaire. En effet lors des deux premiers cycles le crayon combustible est conditionné à un niveau de puissance de 200W.cm^{-1} , avec des températures maximales à cœur de 950°C . Pour ces températures et d'après notre modèle, le combustible possède simplement un comportement élastique et ne flue pas. L'historique de puissance correspondant est reporté sur la Figure 8.1. Les températures calculées à l'aide de CYRANO3 sont décrites sur la Figure 8.2.

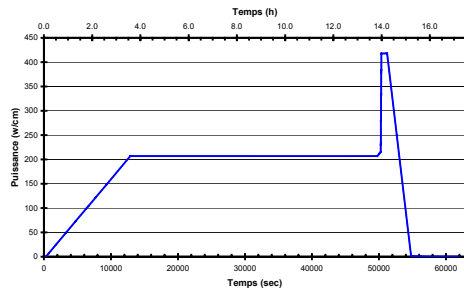
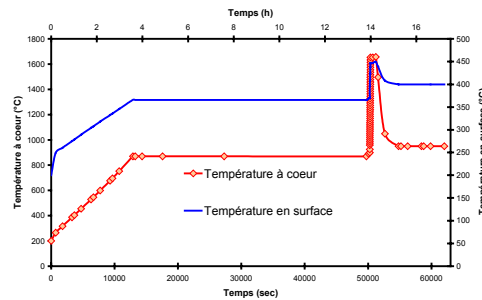


Figure 8.1 - Historique de puissance.

Figure 8.2 - Profils de températures à cœur et en surface de la pastille calculées par CYRANO3.



8.1.2 Maillage

Nous allons simplifier le calcul en considérant un cas axisymétrique. Evidemment cette simplification, qui ne prend pas en compte la fracturation de la pastille, va nettement surestimer les contraintes. Pour cette démonstration de faisabilité d'un calcul, cette représentation 2D simplifiée et raccourcit énormément le calcul. Le maillage que nous avons utilisé est représenté sur la Figure 8.3. Il comporte 786 nœuds et 343 éléments triangulaires. Pour des raisons de symétrie, seule la moitié supérieure de la pastille a été considérée. Nous avons limité le calcul à la seule pastille de combustible.

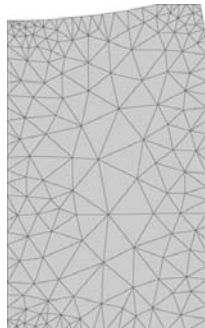


Figure 8.3 - Maillage de la pastille combustible.

8.1.3 Calculs thermomécaniques

Le combustible est le siège d'un fort gradient thermique, qui évolue avec le temps. Ce chargement thermique est à l'origine des sollicitations thermomécaniques dans la céramique. Pour modéliser ces phénomènes, à l'aide de ZéBuLon, nous avons effectué un calcul en plusieurs étapes, en découplant les aspects thermiques et mécaniques. Dans un premier temps, nous avons réalisé un calcul uniquement thermique pour modéliser l'ensemble du cycle. Nous obtenons ainsi une « carte thermique », représentant les températures dans le combustible à chaque nœud du maillage, à chaque instant. Pour le calcul mécanique, en plus des conditions de symétrie, ces cartes thermiques sont imposées au maillage comme conditions aux limites.

Nous allons maintenant décrire les calculs que nous avons effectués : tout d'abord le calcul thermique. Puis un calcul mécanique, où le matériau est considéré simplement élastique, sera réalisé, puis utilisé comme référence. Enfin le dernier calcul mécanique, utilisant notre loi de fluage, permettra d'affiner le calcul des transitoires de puissance. Les résultats obtenus seront finalement comparés à ceux obtenus à l'aide du code METEOR.

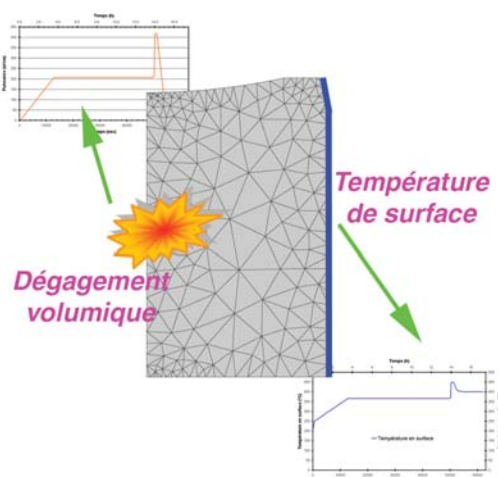
8.2 Calcul thermique

Il s'agit dans ce paragraphe de décrire la simulation thermique du cycle. Dans tous les calculs qui vont suivre, nous allons suivre le même ordre dans notre discours. Tout d'abord les conditions aux limites sont exposées, puis les diverses propriétés du matériau. Enfin les résultats obtenus seront discutés.

8.2.1 Conditions aux limites

L'ensemble des conditions utilisées est résumé sur la Figure 8.4. Le problème thermique n'est pas si simple à mettre en données. Certes, CYRANO3 a pu nous fournir différentes températures caractéristiques, en surface et à cœur de l'oxyde, mais le problème ne peut se résoudre en appliquant ces simples conditions aux limites. En fait pour obtenir des profils thermiques paraboliques de même nature, il faut imposer un dégagement volumique de puissance dans la céramique et un refroidissement de sa surface. Nous avons choisi d'imposer la température de surface en utilisant les valeurs fournies par CYRANO3, sur la Figure 8.2. Le dégagement volumique suit le profil de puissance présenté sur la Figure 8.1. Il faut alors ajuster sa valeur absolue de manière à obtenir des températures cohérentes avec le calcul effectué précédemment.

Figure 8.4 - Conditions aux limites utilisées pour modéliser le cycle thermique de l'oxyde.



8.2.2 Propriétés thermiques du matériau

Nous utilisons les propriétés utilisées dans les codes de calcul CYRANO3 (EDF) ou METEOR (CEA). La conductivité thermique est représentée sur la Figure 8.5. Les valeurs utilisées sont en accord avec les quelques données disponibles dans les différents Handbooks. De même la capacité thermique massique de l'oxyde considérée est tracée sur la Figure 8.6.

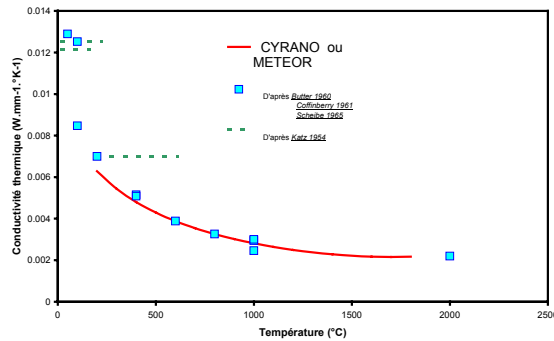


Figure 8.5 - Conductivité thermique de UO_2 .

(Katz 1954, Butler 1960, Coffinberry 1961, Scheibe 1965)

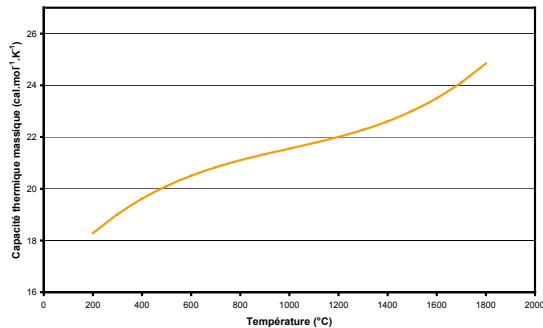
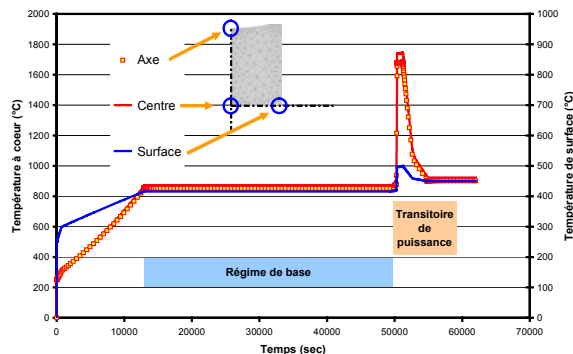


Figure 8.6 - Capacité thermique massique de UO_2 .

8.2.3 Champ thermique

Ce calcul permet d'obtenir le champ de températures, les cartes thermiques, dans le combustible à chaque instant du transitoire. Quelques exemples de cartes sont regroupés sur la Figure 8.9. La Figure 8.7 illustre l'évolution de la température dans le combustible en différents points. La température de surface varie peu, passant de 400°C en régime de base, à 470°C au maximum de puissance. La température à cœur est beaucoup plus élevée, entre 875 et 1 700°C. La Figure 8.8 permet de vérifier que le gradient thermique radial suit une forme parabolique, selon l'axe (1).

Figure 8.7 - Evolution de la température dans le combustible au cours du temps.



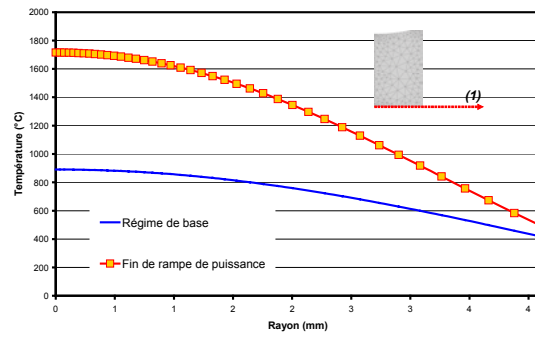


Figure 8.8 - Gradient thermique radial dans la pastille.

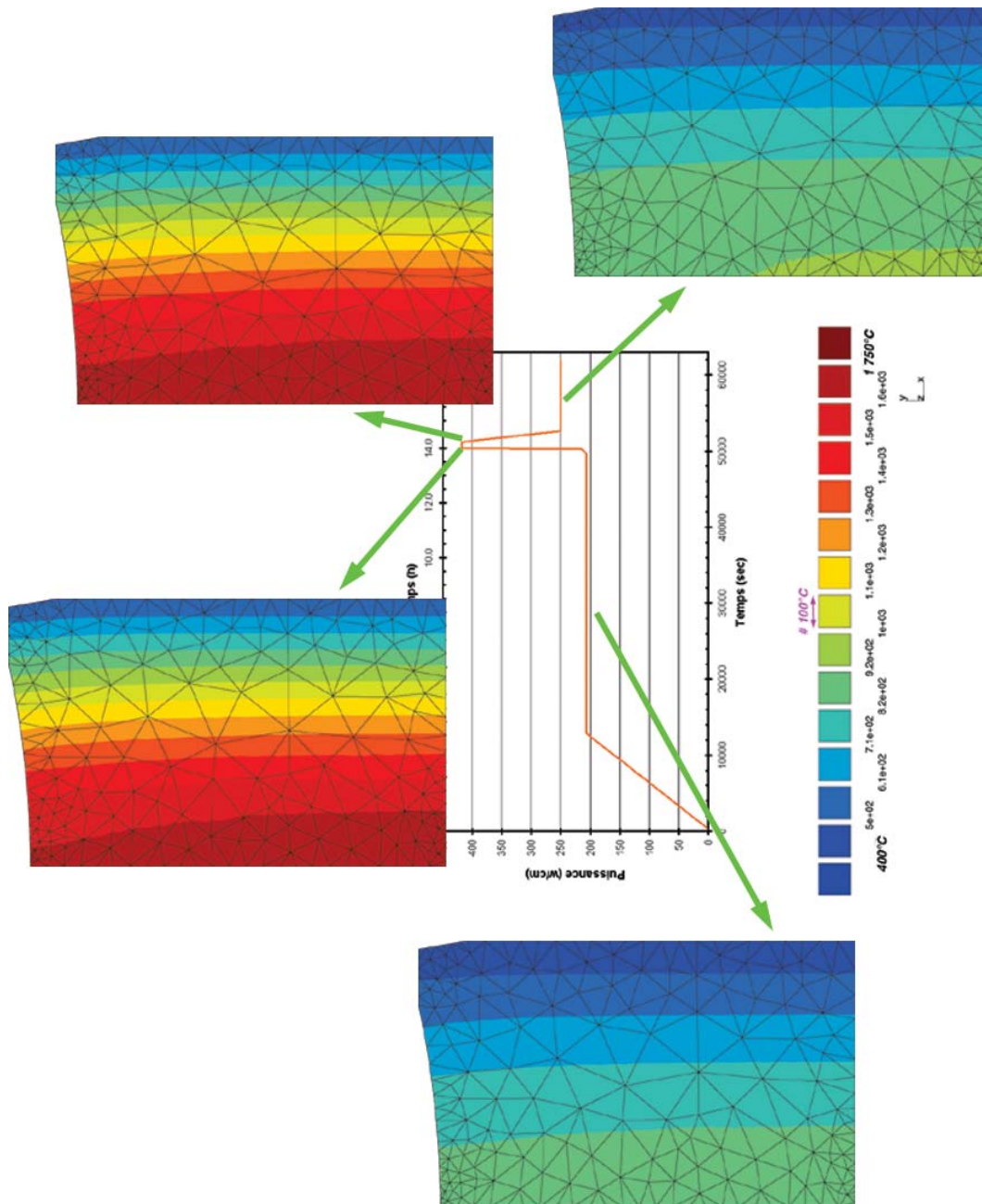


Figure 8.9 - Cartes thermiques à différents instants caractéristiques du cycle de puissance.

La Figure 8.10 et la Figure 8.11 représentent les champs thermiques dans le combustible lors du transitoire de puissance, d'une part à la montée en puissance et, d'autre part, au refroidissement jusqu'au régime de base. Ces graphiques sont analogues à ceux présentés dans le troisième chapitre de cette thèse. Ils nous serviront par la suite pour mieux appréhender les sollicitations mécaniques dans la céramique.

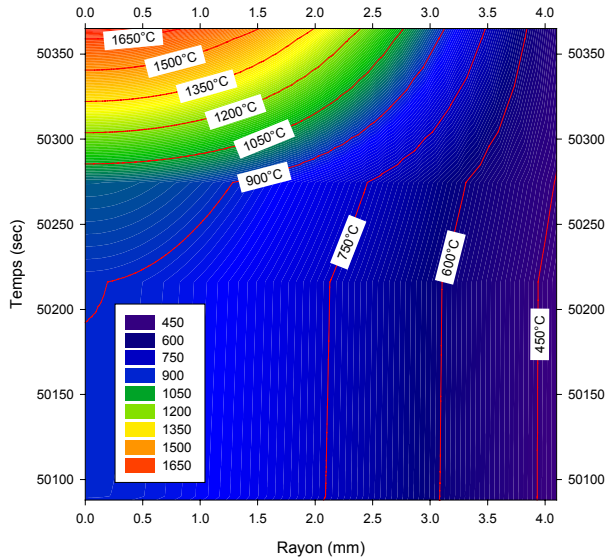


Figure 8.10 - Champ thermique radial dans le combustible à la montée en puissance.

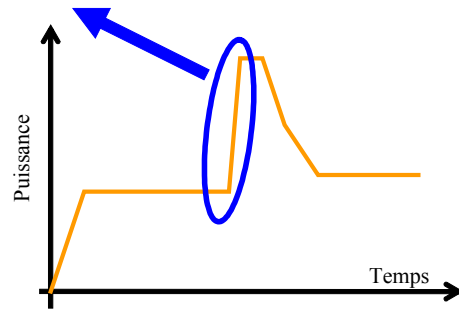
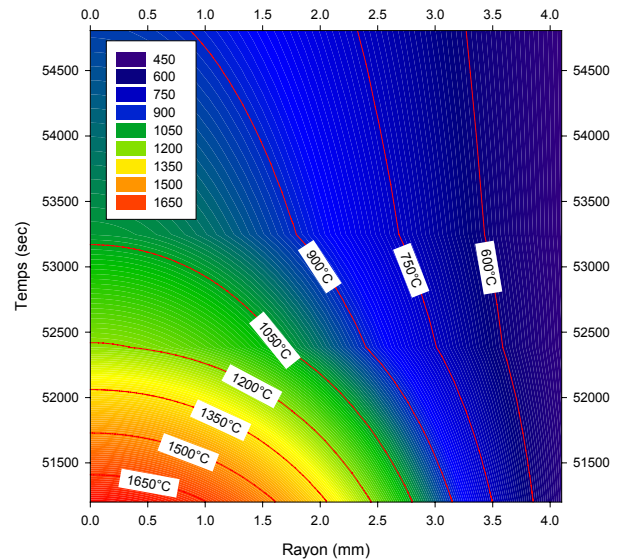
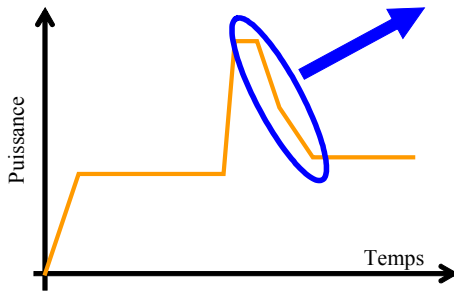


Figure 8.11 - Champ thermique radial dans le combustible à la descente en puissance.



8.3 Calcul mécanique en élasticité

Ce gradient thermique va induire de fortes sollicitations mécaniques dans le combustible. Dans un premier temps, nous allons considérer que le dioxyde a un comportement purement élastique.

8.3.1 Conditions aux limites du calcul

Les conditions aux limites que nous avons utilisées sont résumées sur la Figure 8.12. Par symétrie, les mouvements de l'axe suivant la direction (2) sont bloqués. De même le plan de symétrie orthogonal à l'axe de la pastille est retranscrit en bloquant les mouvements selon l'axe (1). A cela, il faut ajouter les cartes thermiques sur le combustible à chaque instant du cycle.

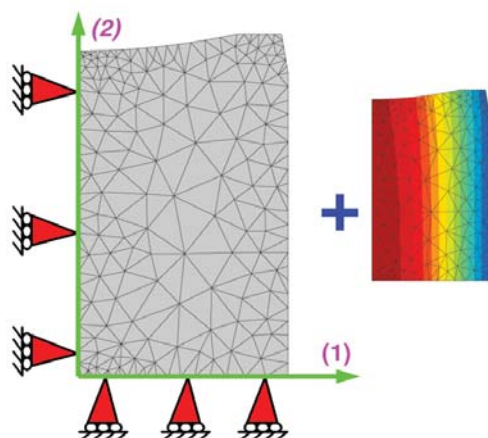


Figure 8.12 - Conditions aux limites pour le calcul mécanique en élasticité.

8.3.2 Propriétés élastiques du dioxyde d'uranium

Nous avons utilisé les valeurs employées dans les codes de calcul CYRANO3 ou METEOR. Le coefficient de dilatation thermique est tracé sur la Figure 8.13, et le module d'élasticité et le coefficient de Poisson, sont représentés sur la Figure 8.14.

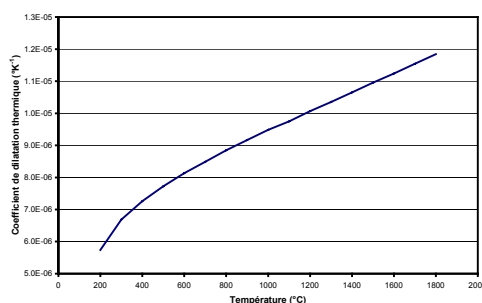


Figure 8.13 - Coefficient de dilatation de UO_2 .

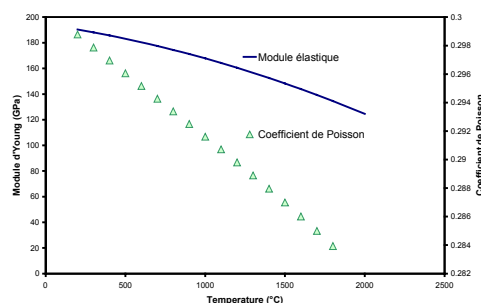


Figure 8.14 - Module d'élasticité et coefficient de Poisson de UO_2 .

8.3.3 Contraintes dans le combustible

Le champ de contraintes obtenu est complexe. Des exemples sont repris sur la Figure 8.15. On y voit que la céramique est principalement en compression radiale, plus ou moins importante selon la puissance, avec une valeur minimale à cœur et nulle en surface. Il subsiste des états de traction suivant la direction radiale, proches des évidements ; cela est dû à un effet de structure. La sollicitation tangentielle σ_θ est plus complexe. Suivant cette direction, UO_2 est en compression à cœur et en traction à sa périphérie.

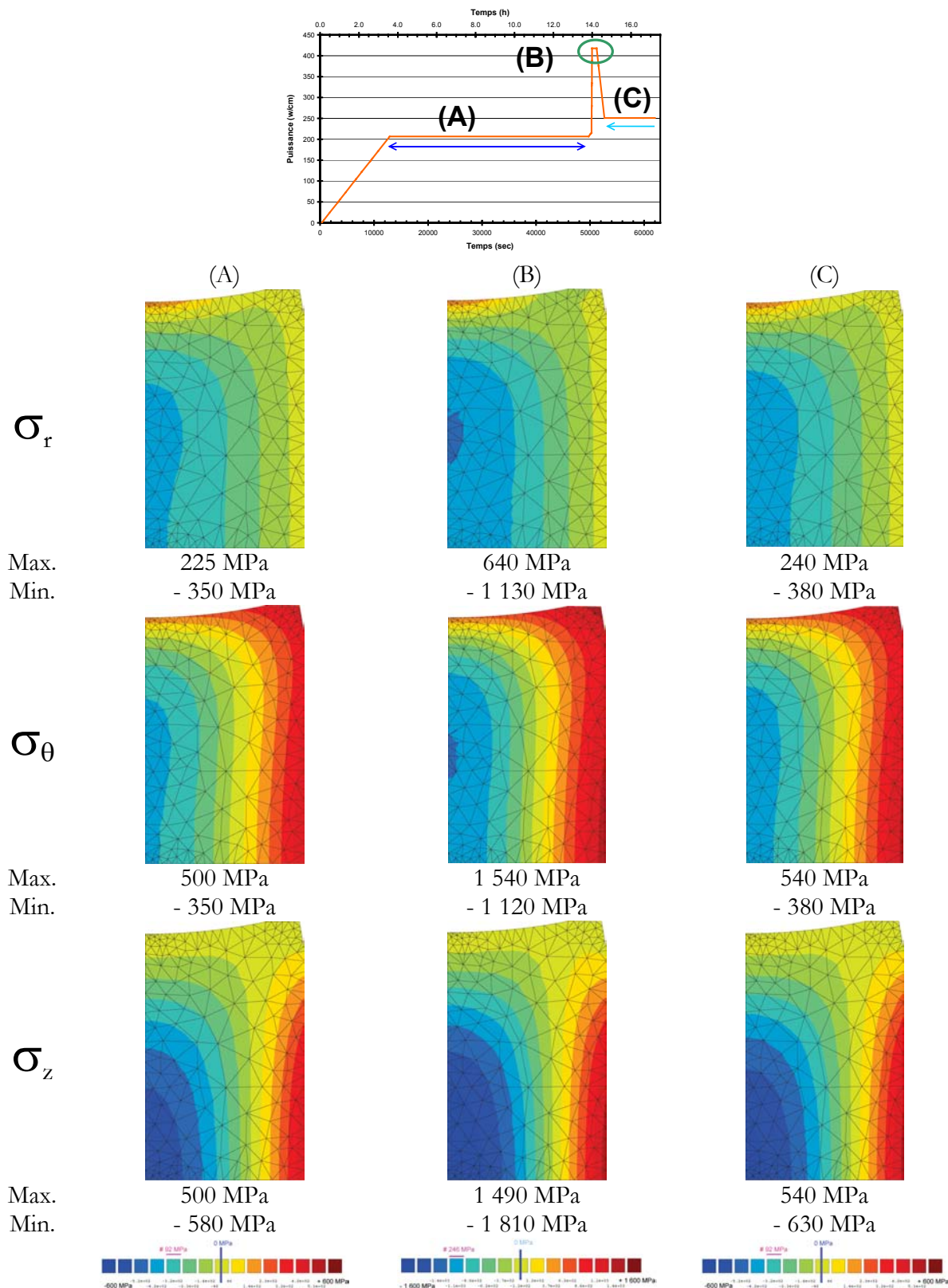


Figure 8.15 - Champs de contraintes dans le combustible au cours du cycle de puissance : loi élastique.

Enfin la contrainte axiale σ_z suit des variations analogues à la contrainte tangentielle, avec une compression à cœur et une mise sous tension en périphérie. Qualitativement, on remarque que la céramique est principalement en compression radiale, comme l'indique la Figure 8.16. L'état à cœur se rapproche d'une compression hydrostatique. Par contre, en périphérie, la céramique est mise sous tension tangentielle et axiale. Les contraintes au niveau de l'évidement sont singulières et dues à l'effet de structure.

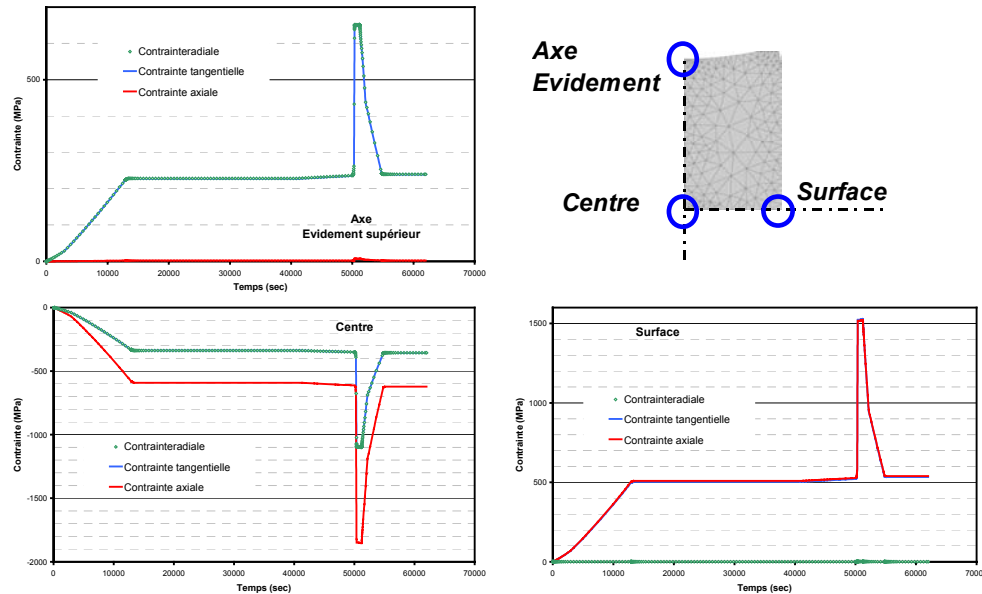


Figure 8.16 - Evolution temporelle des contraintes, à cœur, en surface et au niveau des évidements de la pastille.

Le comportement du matériau ayant été choisi simplement élastique, les sollicitations ne varient pas lorsque le niveau de puissance est constant. L'état de contrainte après le transitoire de puissance, en (C) sur la Figure 8.15, est comparable aux conditions en régime de base, en (A). En fin de montée en puissance, le combustible est beaucoup plus sollicité avec près d'un facteur 3 sur les valeurs de contrainte mais avec des états analogues.

La Figure 8.17 permet de mieux se rendre compte de l'évolution spatiale et temporelle des contraintes dans le combustible. Ainsi il n'y a pas de changement notable des contraintes radiales avant le milieu de la montée de puissance. Les changements sur les contraintes tangentielles et axiales sont encore plus tardifs. Les états complexes tangentiels et axiaux font apparaître une zone non contrainte dans la céramique, hormis la compression radiale. La Figure 8.17 révèle également que, si cette zone ne se déplace pas dans l'oxyde au cours des changements de puissance, sa largeur tend à diminuer. En mettant en parallèle ces graphiques avec le champ thermique, il semble que les changements significatifs de sollicitations apparaissent dès lors que la température à cœur atteint environ 1 000°C.

Evidemment les niveaux de contraintes ne sont pas réalistes, par rapport à la résistance à rupture de l'oxyde. Cela vient en grande partie du fait que la fragmentation initiale de la pastille n'a pas été prise en compte dans ce calcul axisymétrique. Par contre il faut signaler que les états tangentiels sont critiques, les contraintes de traction en périphérie sont rapidement multipliées par 2, dans notre cas 200 sec après le début du transitoire de puissance. Ainsi la pastille présente de forts risques de fissuration tangentielle en début de transitoire.

Un calcul 3D d'un fragment de pastille permettrait d'obtenir des contraintes plus réalistes. Le manque de temps en cette fin de thèse ne nous a pas permis de réaliser ce calcul complexe.

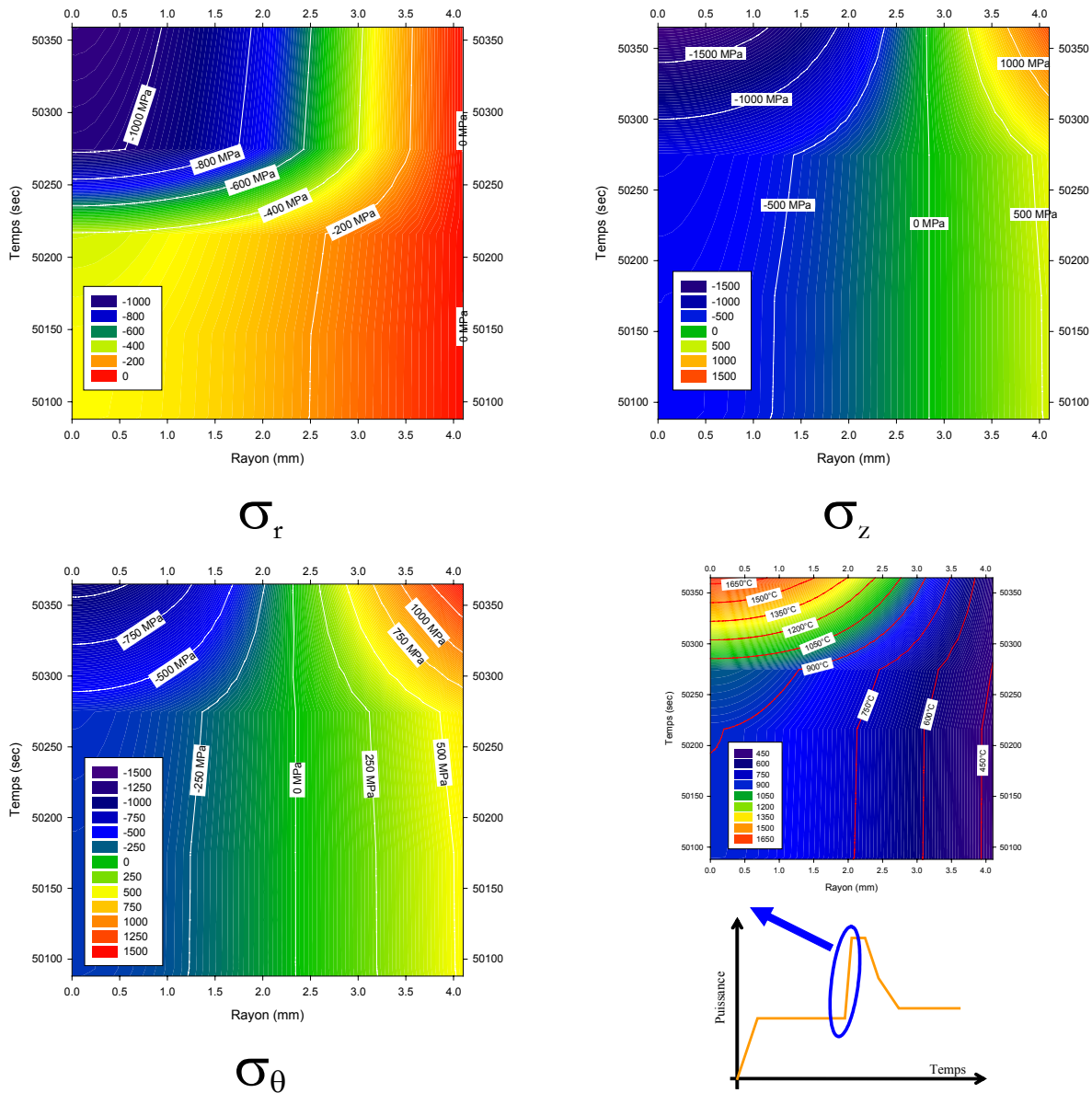


Figure 8.17 - Champs radiaux de contrainte et thermique dans le combustible à mi-hauteur de la pastille lors de la montée en puissance.

Ce calcul mécanique en élasticité a mis en évidence un état de contrainte complexe dans le combustible lors d'un transitoire de puissance. L'oxyde est en compression quasi-hydrostatique à cœur et se rapproche d'un état de traction biaxiale (tangentielle et axiale) sur sa périphérie. Ce résultat qualitatif avait déjà été présenté dans le troisième chapitre de notre mémoire. Toutefois ce calcul apporte quelques informations supplémentaires. Ainsi il a montré qu'il n'y a pas de changement significatif des contraintes avant que le cœur de la pastille atteigne 1 000°C. Les zones de contrainte nulle dans le combustible ne se déplacent pas au cours de la rampe. Enfin il y a un grand risque de fissuration radiale dès 200 sec après le début de la rampe de puissance.

8.4 Calcul mécanique en élasto-viscoplasticité

Nous avons précédemment identifié une loi de comportement en fluage du dioxyde d'uranium que nous allons ici appliquer à un calcul axisymétrique d'une pastille de combustible.

8.4.1 Propriétés mécaniques de UO_2

Le calcul a été réalisé avec les mêmes conditions aux limites que précédemment (symétries et cartes thermiques) en utilisant la loi de comportement identifiée au chapitre 6. Les propriétés élastiques ont été présentées plus haut. A cela s'ajoute notre loi de fluage à 6 paramètres, s'écrivant :

$$\varepsilon_{\text{Tot}} = \varepsilon_{\text{Elastique}} + \varepsilon_{\text{Inelastique}}$$

$$\dot{\varepsilon}_{\text{Inelastique}} = \dot{\varepsilon}_p = \dot{\nu} \tilde{n} \quad \text{avec} \quad \tilde{n} = \frac{\delta f}{\delta \sigma} \quad f = J(\sigma - \underline{X}) - R_0$$

$$\dot{\nu} = \left\langle \frac{J(\sigma - \underline{X}) - R_0}{K} \right\rangle^n$$

$$\dot{\underline{X}} = \frac{2}{3} C \dot{\varepsilon}_p - D \underline{X} \dot{\nu} - \left(\frac{J(\underline{X})}{M} \right)^m \frac{\underline{X}}{J(\underline{X})}$$

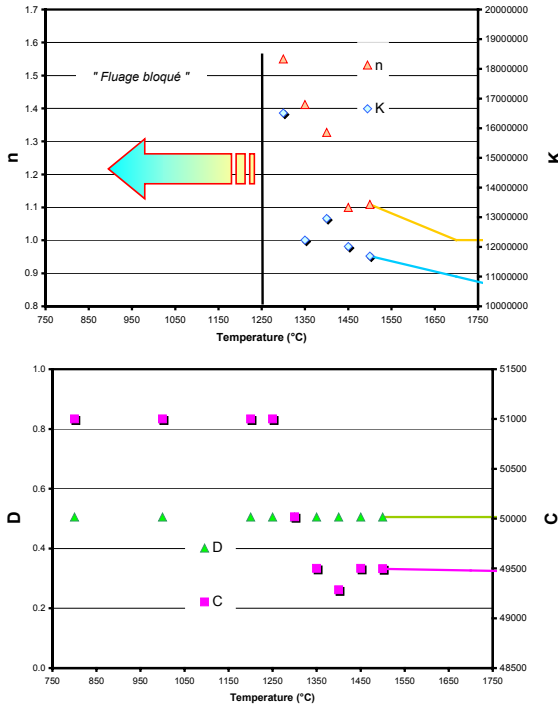
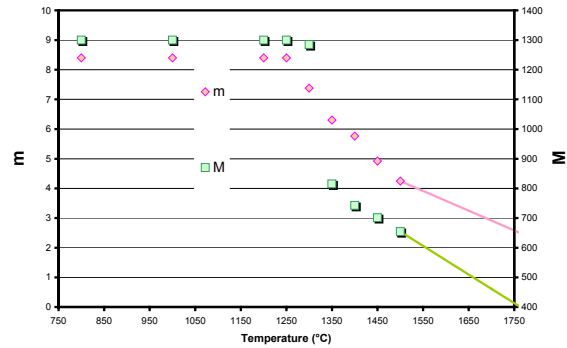


Figure 8.18 - Coefficients de la loi de comportement de UO_2 en flexion : extrapolation vers les hautes températures.



Notre loi ayant été identifiée à partir d'essais menés jusqu'à 1 500°C, pour l'appliquer à ce calcul, il est nécessaire d'extrapoler les coefficients numériques jusqu'à une plus haute température (1 750°C minimum). Rappelons ici que par construction (extensomètre, ligne de charge en céramique) le dispositif ne permet des essais que jusque 1 500°C. La Figure 8.18 illustre les

extrapolations réalisées. Ainsi, les valeurs de K et de n , pour la loi de Norton, diminuent avec la température. On suppose que n atteint sa valeur limite 1. Pour les paramètres C et D , traduisant l'écroutissement cinématique, le graphique met en évidence une saturation pour les hautes températures. Enfin pour la restauration, les coefficients M et m ont été supposés diminuer linéairement entre 1 500 et 1 750°C de la même manière qu'ils le font entre 1 400 et 1 500°C.

8.4.2 Sollicitations en transitoire de puissance : loi élasto-viscoplastique

La Figure 8.19 présente les champs de contraintes dans la céramique au cours du cycle de puissance : en régime de base, (A), en fin de rampe de puissance, (B), en fin du niveau haut de puissance, (C), et après retour en régime de base (D). En suivant l'historique de puissance, en régime de base, le champ de contrainte est identique à celui produit par un calcul élastique. En effet dans notre loi, le matériau ne peut se déformer plastiquement qu'à partir de 1 250°C, alors qu'en régime de base, la température dans le combustible ne dépasse pas 900°C.

En fin de montée en puissance (B), le calcul ne produit pas de différences significatives, qualitativement et quantitativement, avec un calcul élastique. Tout au plus peut-on noter une légère diminution des contraintes maximales de traction et de compression. Le potentiel viscoplastique de l'oxyde ne suffit pas pour relaxer de manière significative les contraintes lors de la montée en puissance du cœur, et ne peut donc éviter la fissuration de la céramique.

A ce niveau de puissance le matériau a un comportement viscoplastique à cœur. Il apparaît des déformations permanentes dans la céramique, qui entraînent une diminution des contraintes. Ainsi, après moins de 15 min de maintien au niveau haut de la puissance, en (C), les contraintes radiales ont nettement diminué. Le retour à plus basse température, (D), s'accompagne de fortes incompatibilités de déformation entre le cœur qui a eu la possibilité de relaxer les contraintes et la périphérie plus froide qui est restée élastique donc peu déformable. Alors il apparaît des zones de traction radiale dans le dioxyde. Le transitoire de puissance a complètement changé les répartitions de contrainte dans la céramique. Le combustible se trouve alors en traction triaxiale à cœur, et en traction biaxiale (tangentielle et axiale) à sa périphérie. Il existe une zone intermédiaire de compression.

La Figure 8.20 illustre l'évolution des contraintes en fonction du temps en différents points du combustible. On remarque que les contraintes de traction tangentielle et axiale, en périphérie, diminuent peu lorsque la puissance est maximale. Par contre, lors du retour à froid, elles sont plus faibles que dans le régime de base précédent, en (A). A cœur, le comportement du matériau est autre. En effet, la température élevée autorise des déformations permettant la relaxation des contraintes avant la fin de la rampe de puissance. Lors du retour en régime de base, le dioxyde se retrouve même en traction triaxiale.

Au niveau des évidements, la géométrie introduit un effet de structure. Dans cette zone, le matériau est en tractions radiale et tangentielle lors du premier régime de base, (A), puis, lorsque la température est suffisamment élevée, le matériau se déforme jusqu'à relaxer complètement les contraintes en fin de niveau haut de puissance. Au retour à froid, par incompatibilité de déformation entre cœur et périphérie, les évidements se retrouvent en compressions radiale et tangentielle.

Nous disposons à cet instant de valeurs de contraintes en fonction du temps (Figure 8.19) pour différents points de l'espace (Figure 8.20). Pour obtenir plus d'informations, nous allons décrire les champs de contraintes et leurs évolutions temporelles dans le combustible, à l'aide des cartes présentées précédemment. Les Figure 8.22 à Figure 8.27 représentent les sollicitations thermomécaniques dans le combustible lors du transitoire de puissance. La partie de gauche représente la montée en puissance et celle de droite le retour au régime de base, séparées par un temps de maintien de moins de 15 min, au niveau maximal de puissance. Nous raisonnerons par rapport à un repère dont l'origine est au centre de la pastille.

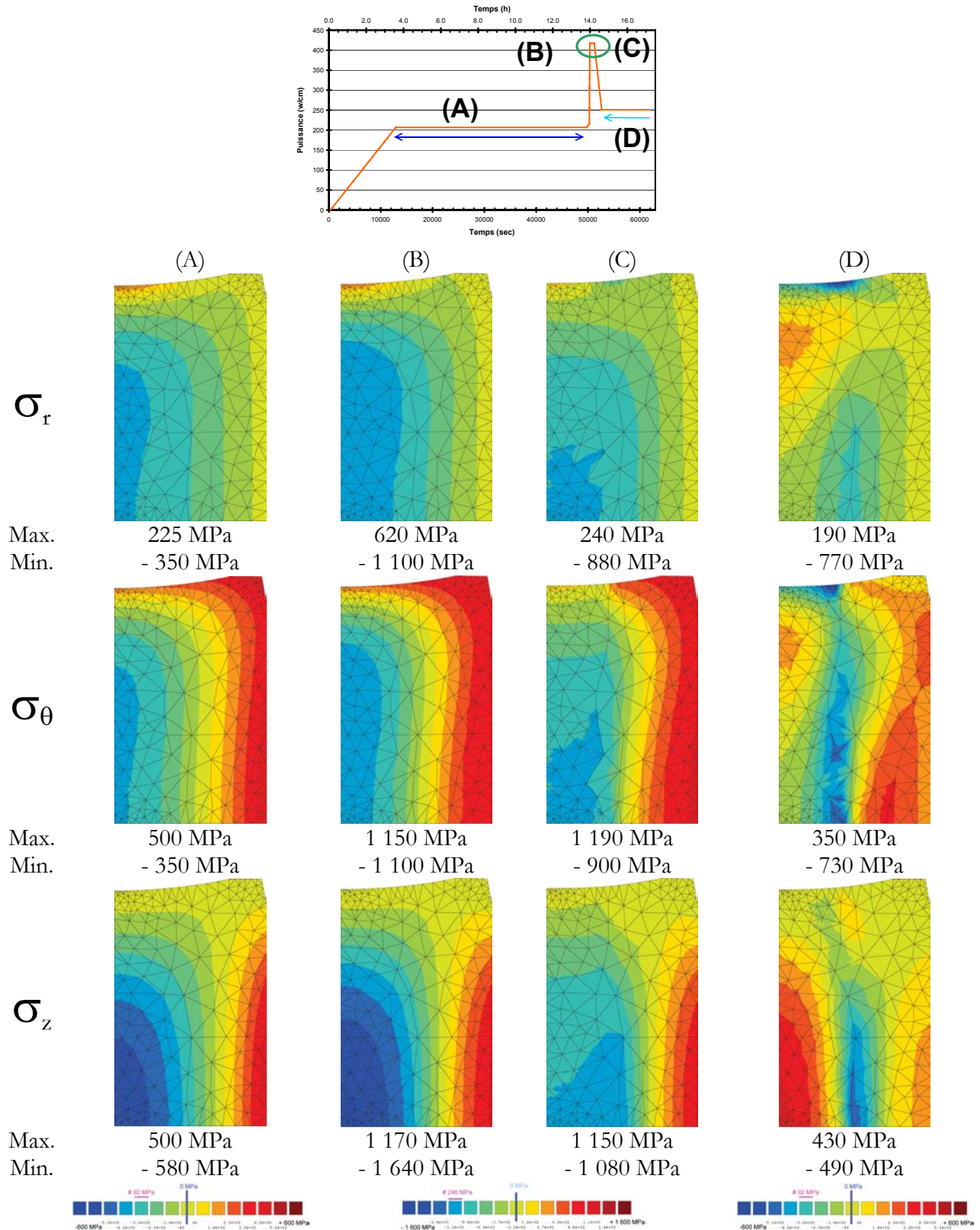


Figure 8.19 - Champs de contrainte dans le combustible : loi élasto-viscoplastique.

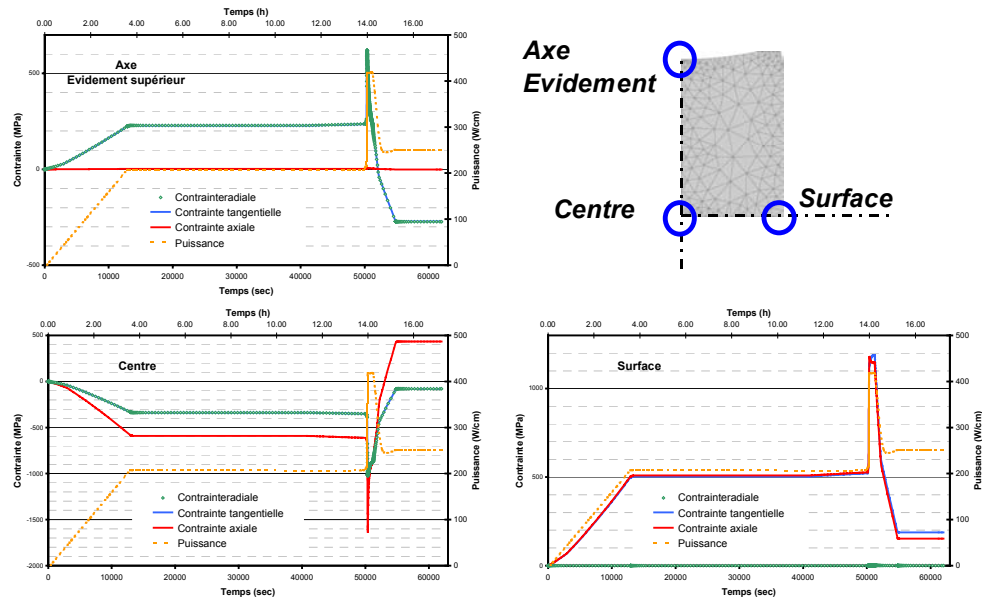


Figure 8.20 - Evolution temporelle des contraintes, à cœur, en surface et au niveau des évidements de la pastille : loi élasto-viscoplastique.

Nous nous intéressons à la montée rapide en puissance, de 50 100 à 50 350 secondes, et au maintien du niveau de la puissance, jusqu'à 51 200 sec. Le retour à froid, plus complexe, sera traité ensuite. Dans un premier temps, nous avons caractérisé les sollicitations dans le plan à mi-hauteur de la pastille, illustrées par la Figure 8.22. La température de 1 250°C, qui déclenche l'apparition du fluage, est atteinte à cœur de la pastille en fin de montée en puissance, et lors du maintien, sur un rayon maximal de 2,3 mm. Cet espace définit la zone où le combustible viscoplastique peut se déformer et donc permettre une relaxation des contraintes. Pour montrer une diminution des contraintes il faut comparer les valeurs produites par le calcul élastique à celles calculées en introduisant la viscoplasticité dans le comportement du matériau. Le parallèle est fait sur les Figure 8.24 et Figure 8.25 (pages 184 et 185). On observe une très faible relaxation de la contrainte radiale. Les courbes isocontraintes se situent aux mêmes endroits. La relaxation semble plus importante pour la contrainte tangentielle ; l'isovaleur nulle se déplace vers le cœur de la pastille lors du maintien à puissance élevée. Ces faibles relaxations affectent beaucoup plus les contraintes en périphérie du combustible. Ce résultat étonnant s'explique par le fait que la zone chaude déformable à cœur est en compression quasi-hydrostatique qui ne peut provoquer que très peu de déformation car le matériau est supposé incompressible. Cette hypothèse demande à être vérifiée, connaissant la microstructure du combustible, notamment sa porosité.

Par contre en observant les contraintes axiales, on remarque une plus forte relaxation des contraintes et une répartition plus complexe. On observe un écoulement de matière selon l'axe de la pastille. Cette observation peut être vérifiée en étudiant les sollicitations dans la céramique le long de son axe. La Figure 8.23 rappelle les températures le long de l'axe de la pastille au cours du transitoire de puissance. La température élevée autorise des déformations viscoplastiques en fin de montée en puissance et tout au long du maintien de celle-ci.

Par symétrie, les contraintes tangentielles et axiales sont équivalentes. L'évidement permet une forte relaxation des contraintes, jusqu'à atteindre un niveau nul avant la fin du maintien de la puissance maximale. Cette relaxation s'accompagne de fortes déformations près de la surface supérieure de la pastille et au cœur : l'écoulement de matière est dans cette zone principalement axial, ce qui entraîne une relaxation des contraintes associées, notamment visible sur la partie inférieure de la Figure 8.27 en comparaison de la Figure 8.26 (pages 186 et 187).

On vient de voir que la relaxation des contraintes attendue lors de la montée en puissance du combustible a principalement lieu près des évidements de la pastille. La zone à cœur pourtant chaude ne donne lieu qu'à une faible relaxation car elle se trouve dans un état de compression quasi-hydrostatique qui ne provoque que des déformations négligeables. Les déformations subies par le combustible sont en relation directe avec les taux de relaxation des contraintes. Ainsi, près des évidements, l'écoulement de matière se fait suivant l'axe de la pastille. A cœur, les déformations sont plus complexes : la composante axiale diminue alors que celle radiale devient prépondérante lorsqu'on se rapproche de la périphérie de la pastille. La Figure 8.21 donne une représentation de ces déformations amplifiées par un facteur 25. Lors du retour au régime de base, en (D), les contraintes sont alors plus induites par les incompatibilités de déformation que par le gradient thermique plus faible.

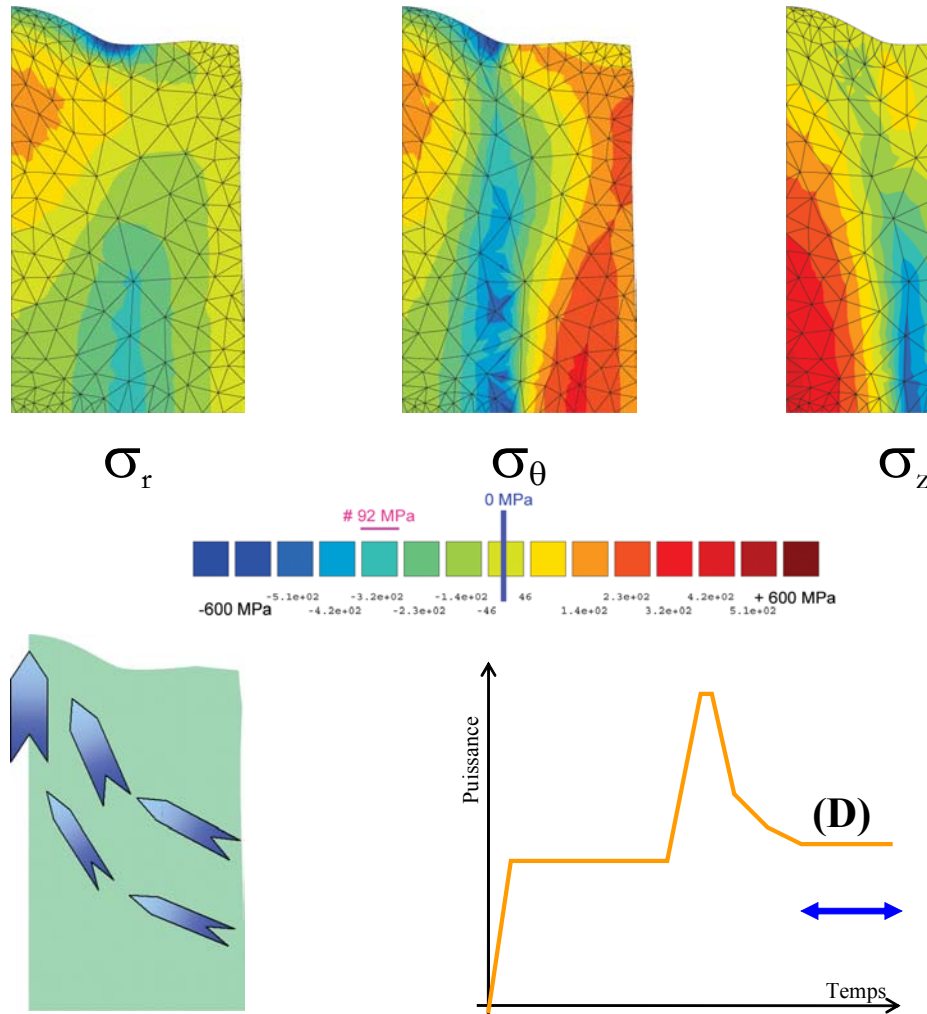


Figure 8.21 - Association des contraintes et des déformations subies par le combustible après un transitoire de puissance : retour au régime de base.

Le combustible est alors principalement en compression radiale. Il existe près des évidements une région de traction biaxiale, radiale et tangentielle. En périphérie, le combustible est sous tension tangentielle. Au niveau du cœur qui ne s'est pratiquement pas déformé, les contraintes sont quasi nulles. Il existe une zone de compression tangentielle. Le combustible est principalement en traction axiale, d'une valeur d'autant plus élevée que l'on se rapproche du centre de la pastille.

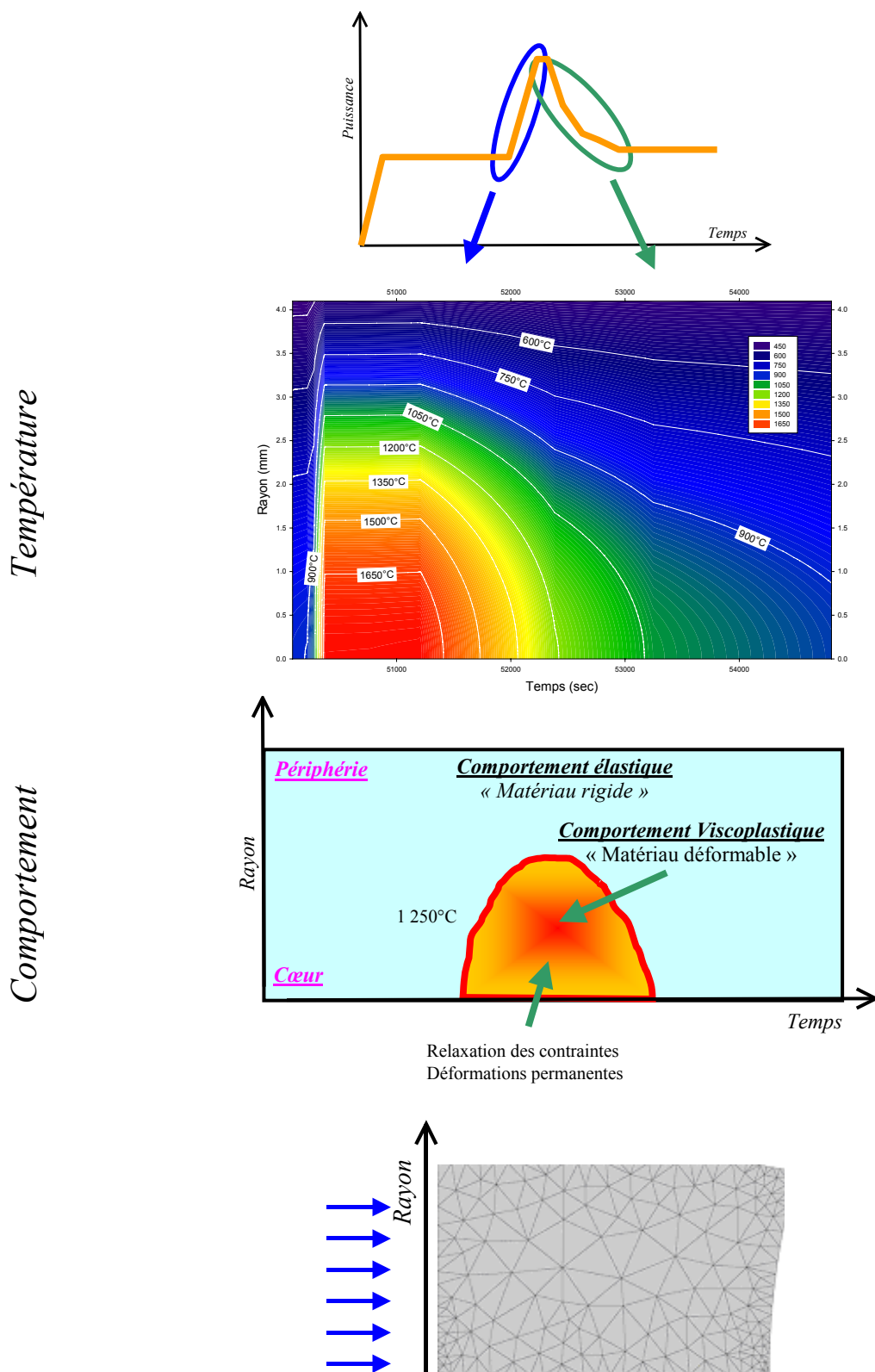


Figure 8.22 - Sollicitations thermiques dans le plan médian de la pastille lors d'un transitoire de puissance : comportement mécanique associé.

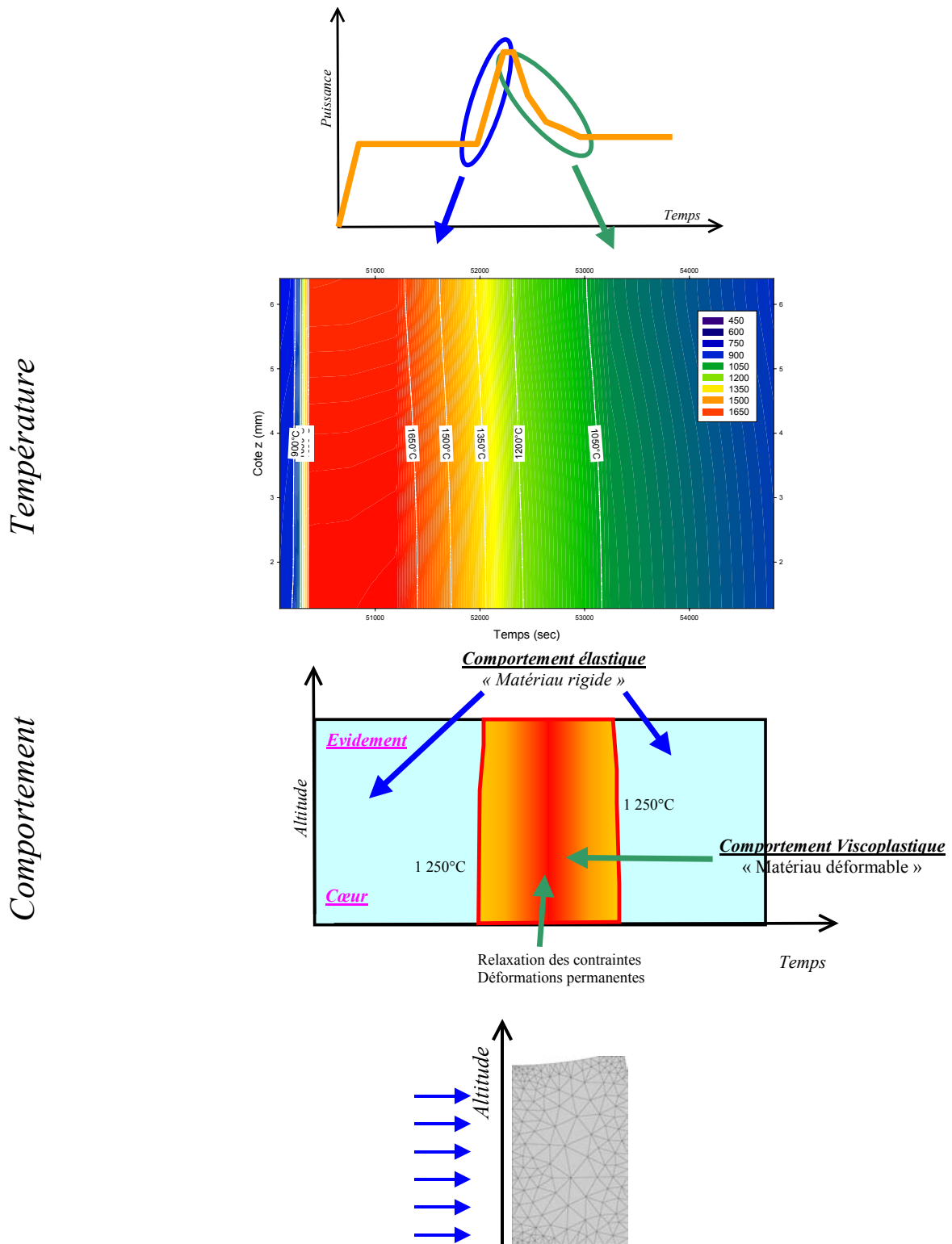


Figure 8.23- Sollicitations thermiques le long de l'axe de la pastille lors d'un transitoire de puissance : comportement mécanique associé.

Dans le plan à mi-hauteur de la pastille – Calcul en élasticité

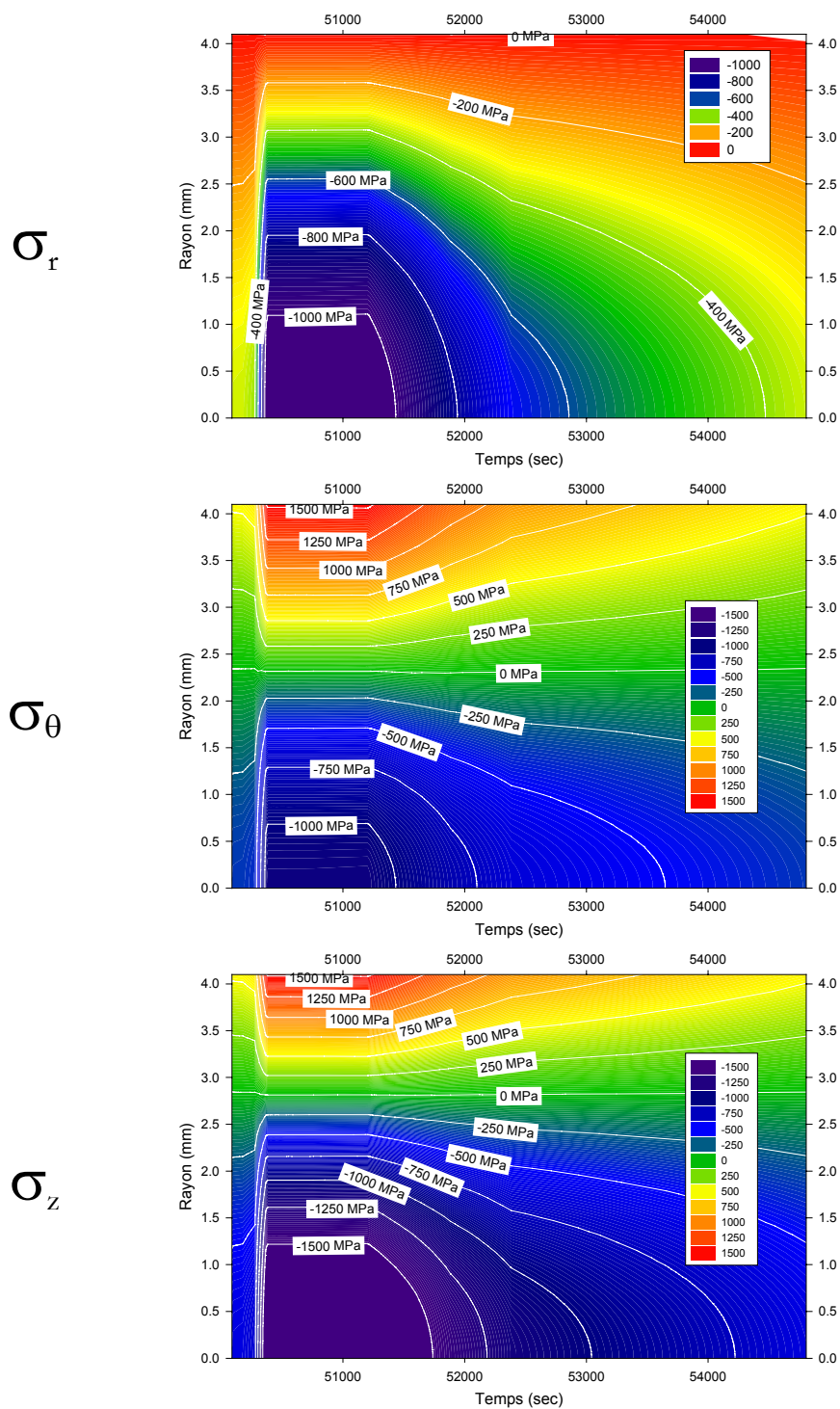


Figure 8.24 - Contraintes dans le plan médian de la pastille : évolution temporelle lors du transitoire de puissance dans le cas d'un calcul en élasticité.

Dans le plan à mi-hauteur de la pastille – Calcul élasto-viscoplastique

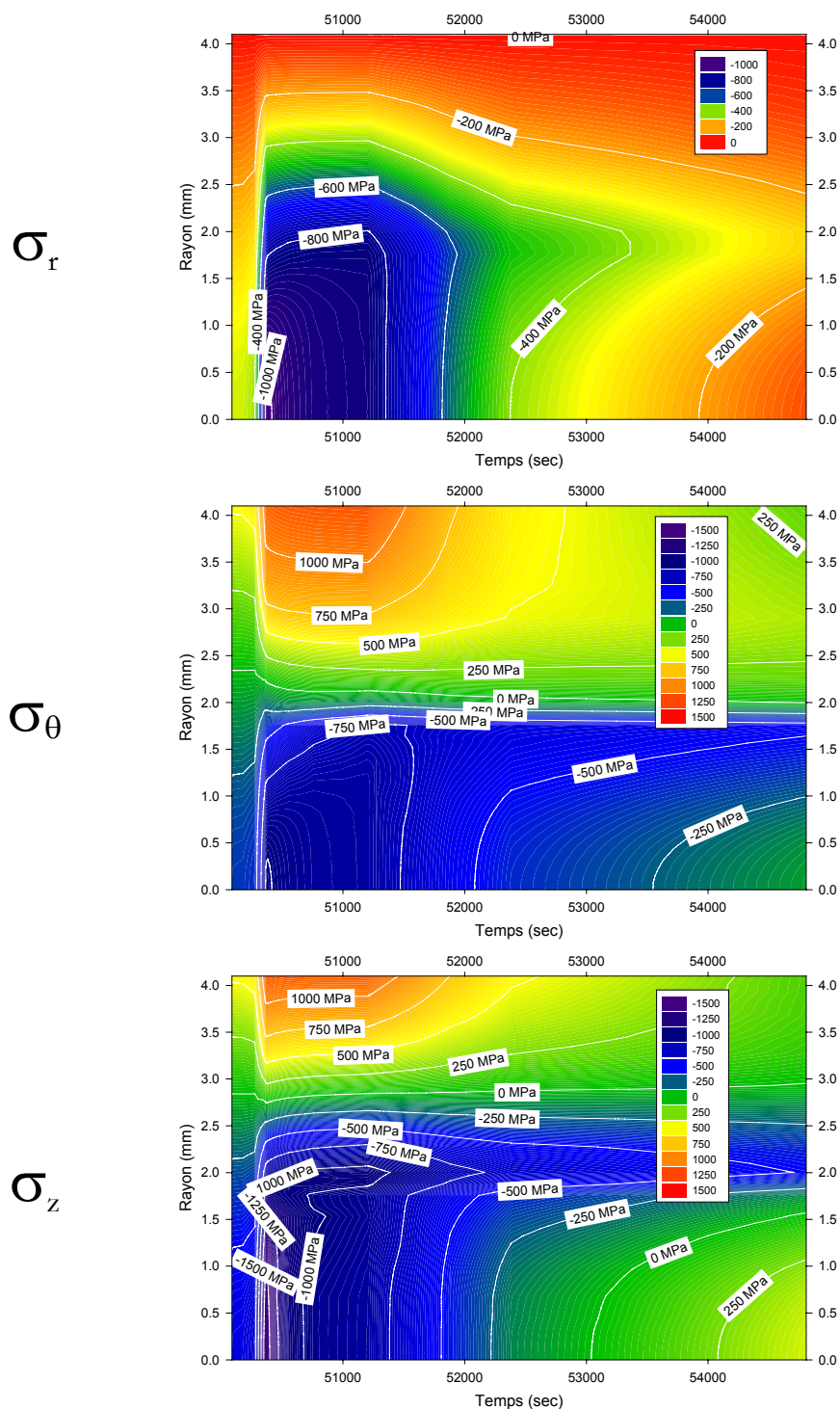


Figure 8.25 - Contraintes dans le plan médian de la pastille : évolution temporelle lors du transitoire de puissance dans le cas d'un calcul élasto-viscoplastique.

Le long de l'axe de la pastille – Calcul en élasticité

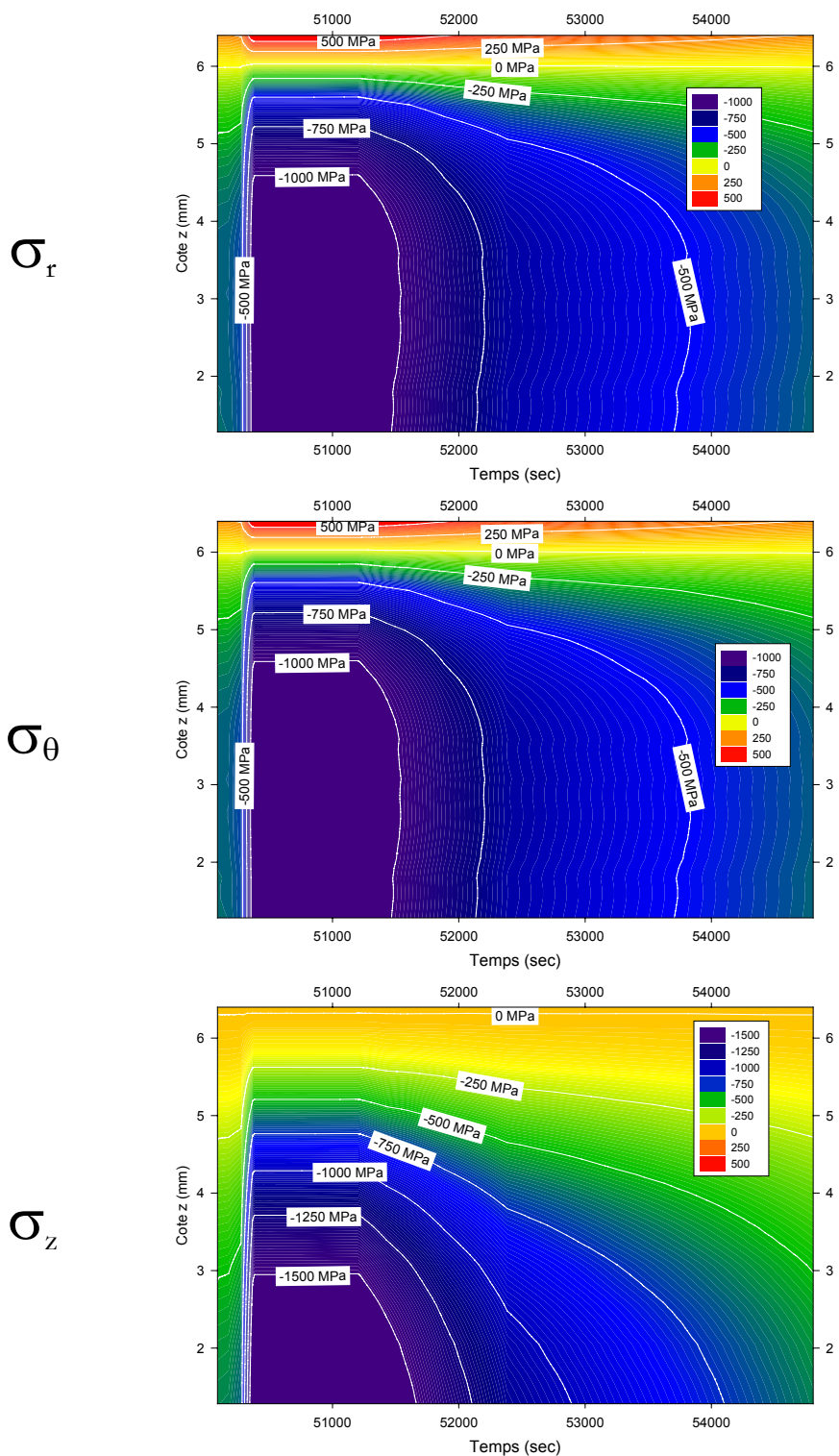


Figure 8.26 - Contraintes le long de l'axe de la pastille :
évolution temporelle lors du transitoire de puissance dans le cas d'un calcul en élasticité.

Le long de l'axe de la pastille – Calcul élasto-viscoplastique

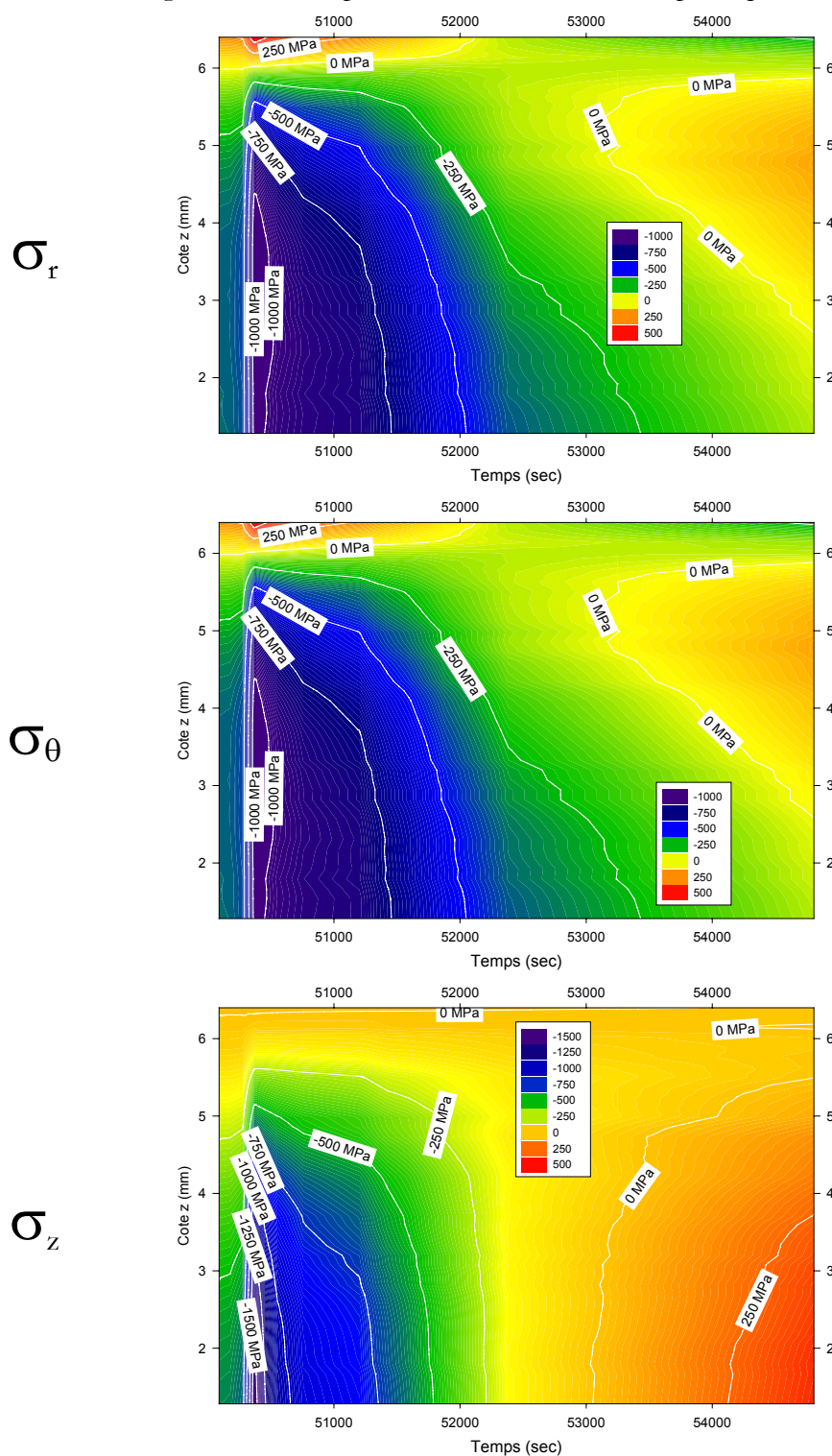


Figure 8.27 - Contraintes le long de l'axe de la pastille : évolution temporelle lors du transitoire de puissance dans le cas d'un calcul élasto-viscoplastique.

8.4.3 Comparaison avec les calculs METEOR

Le code de calcul METEOR, développé au CEA, dispose, pour décrire le comportement mécanique de l'oxyde, d'une loi complexe de fluage. Ce modèle permet de tenir compte notamment du fluage thermique (y compris à base température, en régime de base) et de l'irradiation. Il peut donc lui aussi retranscrire la relaxation des contraintes lors d'une rampe de puissance. Nous allons dans ce paragraphe comparer ces résultats de nos simulations exposés précédemment.

Une première différence dans ces calculs vient de la forme de la loi. En effet, le modèle utilisé dans METEOR est basé sur une loi de Norton simple, et tenant compte des deux domaines de comportement. Notre loi peut quand elle, décrire le fluage primaire du matériau, par contre elle ne tient compte que du domaine dit des faibles contraintes. En tenant compte du fluage primaire, dans les premiers temps du transitoire, les relaxations de contraintes devraient être beaucoup plus marquées. De plus notre loi va décrire les phénomènes de recouvrance dans le dioxyde lors du retour au régime de base, où il y a une forte chute des contraintes, ce qui peut être assimilé à un essai de dip test « industriel ».

La modélisation uniaxiale utilisée dans METEOR représente le plan médian des pastilles. Le cycle de puissance utilisé est tout à fait comparable à celui utilisé pour nos calculs, comme le montre la Figure 8.28.

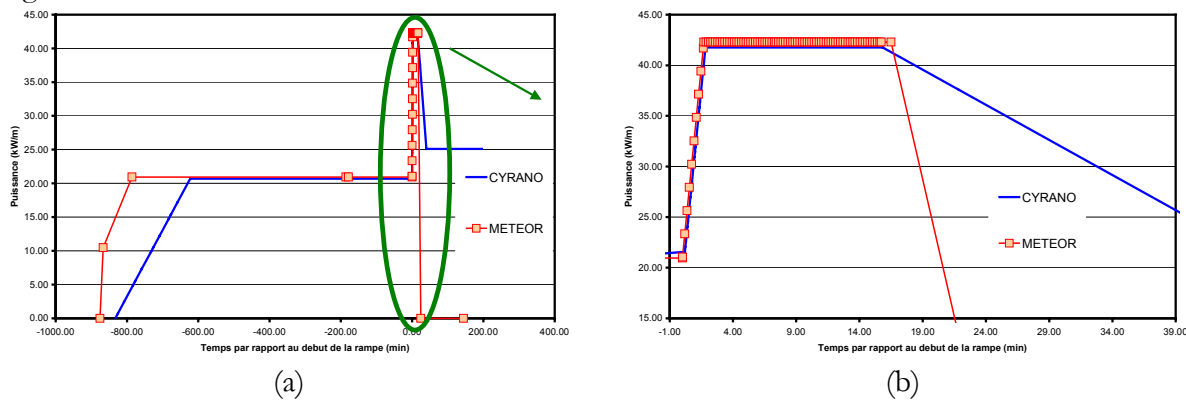


Figure 8.28 - Cycles de puissance utilisés lors des calculs effectués sur METEOR et CYRANO3 ou ZeBuLoN.

Les champs thermiques calculés, présentés sur la Figure 8.30, sont évidemment similaires, avec toutefois des températures légèrement plus faibles pour le calcul ZeBuLoN. Les codes calculent alors les sollicitations mécaniques dans la pastille. Les contraintes sont regroupées et comparées sur la Figure 8.29. METEOR permet de prévoir la fissuration de la pastille lors de la montée en température du cœur. Il s'agit d'un critère en contrainte limite de traction supportable par la céramique. Lorsqu'une partie de la pastille est fissurée, une contrainte nulle est imposée aux surfaces libres créées. Les zones fissurées dans l'oxyde sont notamment visibles sur les champs de contraintes axiales et tangentielles, pour des rayons respectifs de 3 et 2 mm. Cette limite de zone, sans doute multi fissurée, est à mettre en parallèle avec l'isocontrainte nulle fournie par ZeBuLoN. La prise en compte de cette rupture de l'oxyde permet à METEOR d'obtenir des contraintes beaucoup plus réalistes. Par contre, ce code ne prévoit pas de rupture supplémentaire lors de la rampe de puissance.

En comparant les champs de contraintes, représentés par la Figure 8.29, pour des rayons inférieurs à l'isovaleur nulle sur ZeBuLoN, on remarque que les deux calculs fournissent des courbes axiales et tangentielles d'isocontraintes assez similaires, évidemment en faisant abstraction des niveaux absolus de contrainte. En revanche METEOR prévoit une relaxation beaucoup plus marquée des contraintes radiales. Cela peut en partie être expliqué par la différence de température entre les deux calculs.

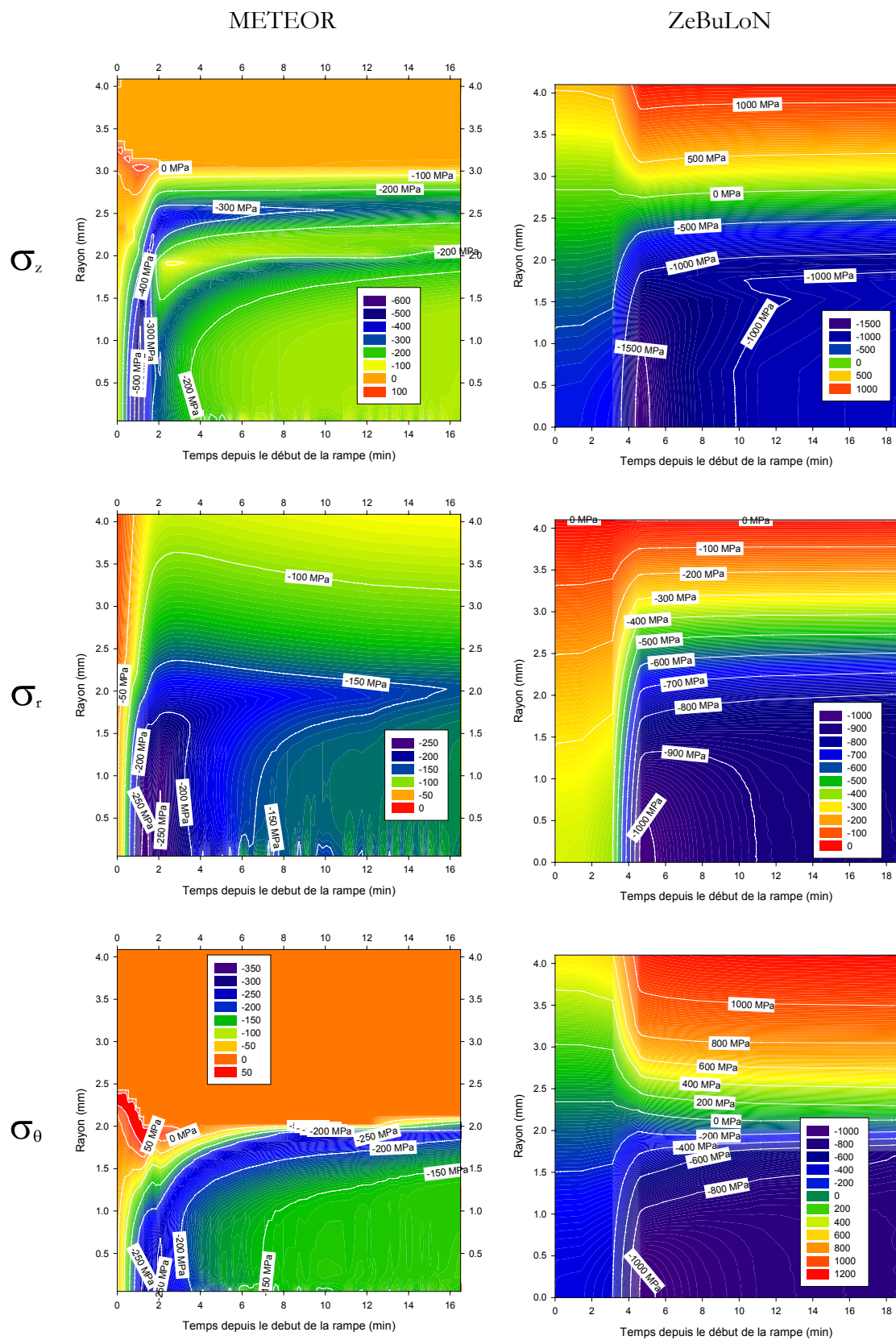


Figure 8.29 - Champs de contraintes dans le plan médian de la pastille, lors de la montée en puissance et du maintien.

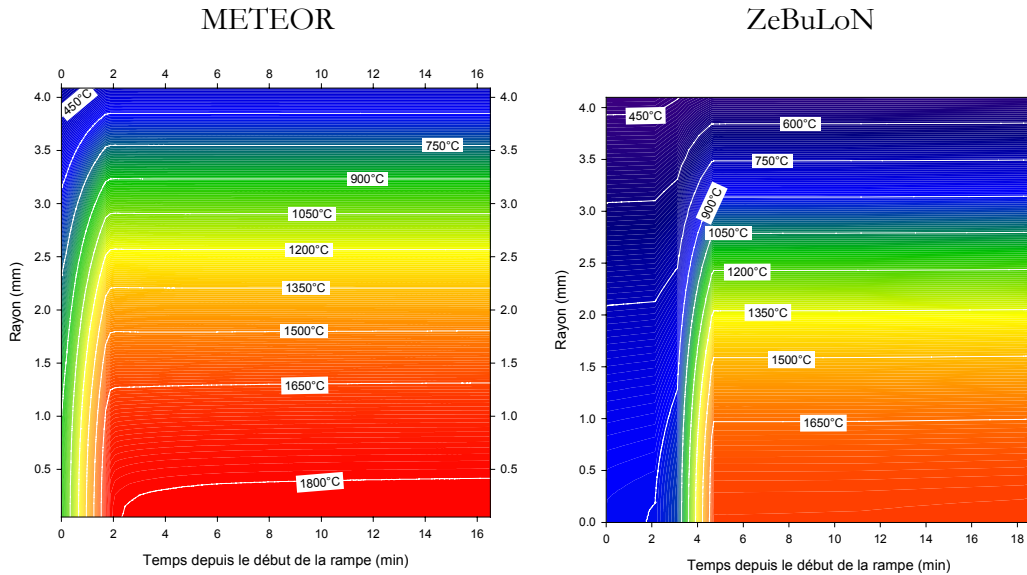


Figure 8.30 - Champs thermiques dans le combustibles lors d'une rampe de puissance suivie d'un maintien.

Ainsi les deux calculs, METEOR ou ZeBuLoN, fournissent des résultats comparables lorsque le combustible suit un comportement élasto-viscoplastique. Quelques différences, dues à l'utilisation des codes, sont à noter. D'une part METEOR permet d'obtenir des contraintes plus réalistes en tenant compte des phénomènes de fissuration. Par contre METEOR ne tient pas compte du fluage primaire et sous estime donc les relaxations de contrainte dans la pastille. Enfin METEOR ne peut révéler l'écoulement de matière axiale, comme le montre ZeBuLoN, et qui sont évidents dans les retours d'expertises de crayons usagés.

8.4.4 Résumé et retour de réacteur

Avant de conclure ce chapitre, nous allons ici résumer les points les plus intéressants de notre simulation en les comparant avec une expertise d'un crayon rampé en réacteur, sur la Figure 8.32. Ce crayon est déjà présenté sur la Figure 1.6, page 12. Enfin nous allons uniquement caractériser les contraintes tangentielles dans le combustible, où les phénomènes sont les plus spectaculaires.

Dans nos conditions de simulation, les contraintes ont évidemment un niveau très élevé et physiquement irréaliste, comme sur la Figure 8.31 (a), en régime de base. Pour obtenir des valeurs correctes, il faudrait avoir recours à une simulation 3D du combustible en introduisant un critère de fissuration de la céramique. Il faudrait dans un premier temps simuler un fragment de combustible. En connaissant ces limites, nous allons uniquement décrire les aspects phénoménologiques lors de ce transitoire de puissance.

Ainsi lors de la brusque montée de puissance, sur la Figure 8.31 (b), il y a une forte hausse des contraintes mais sans changement significatif dans l'allure des champs de répartition. Aussi le fluage de la céramique ne permet pas de relaxer suffisamment les contraintes lors de cette hausse de puissance. Il y a une fissuration radiale du combustible. Sur la Figure 8.32, un réseau de microfissurations radiales y est clairement visible.

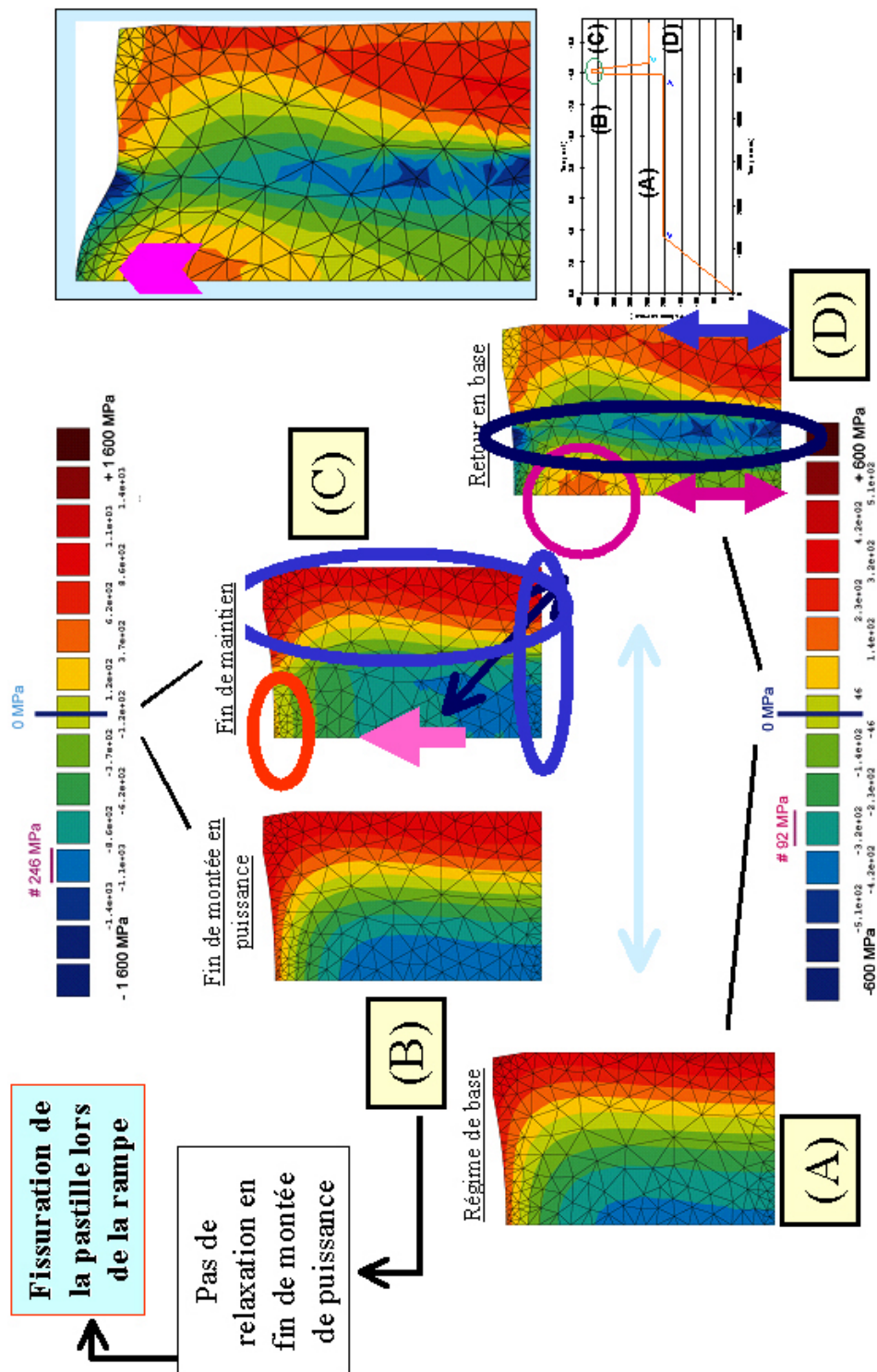


Figure 8.31 - Evolution des contraintes tangentielles dans le combustible lors du transitoire.

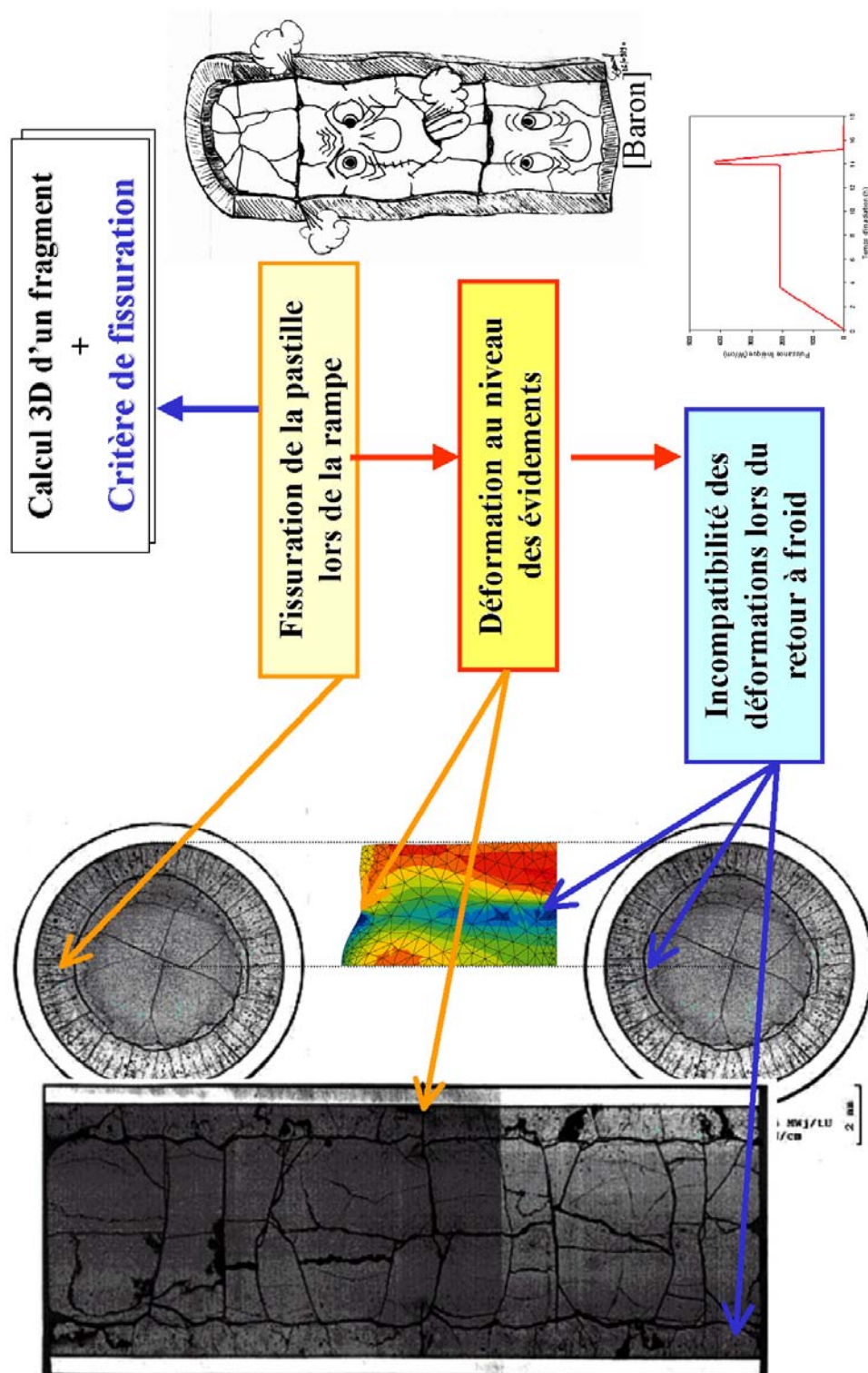


Figure 8.32 - Comparaison de notre calcul avec un crayon rampé, retour de réacteur.

Ensuite lors du niveau haut de puissance, en (c), il y a une forte relaxation des contraintes notamment dans la zone des évidements. Ces relaxations entraînent principalement un écoulement axial de matière, allant même jusqu'à un comblement complet des évidements dans le cas du crayon rampé. A ces niveaux de puissance, on note également une très faible diminution des contraintes dans la périphérie froide du combustible, où l'oxyde possède un comportement simplement élastique, très peu déformable. Enfin on note aucune relaxation des contraintes dans le plan médian des pastilles, bien que le matériau soit à des températures élevées, autorisant donc d'éventuelles déformations. Le matériau est sollicité en compression, voir en compression quasi hydrostatique, limitant fortement les possibilités de mouvements de matières.

Lors du retour à froid (d), la répartition des contraintes est complexes et est essentiellement due aux incompatibilités de déformation dans l'oxyde. Ces contraintes entraînent une fissuration circonférentielle dans le combustible rampé, sur la Figure 8.32.

8.5 Conclusion

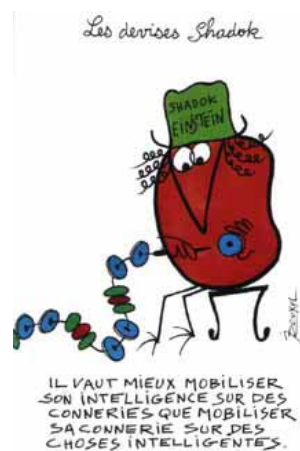
L'optique de cette thèse était d'obtenir une loi de comportement capable de décrire les conditions de transitoire de puissance d'un réacteur. Nous avons alors modélisé le comportement mécanique du matériau à l'aide d'une loi de fluage à variables internes d'écrouissage cinématique et de restauration. Disposant alors de cette loi, nous l'avons appliquée à un calcul de transitoire de puissance pour évaluer sollicitations subies par le combustible.

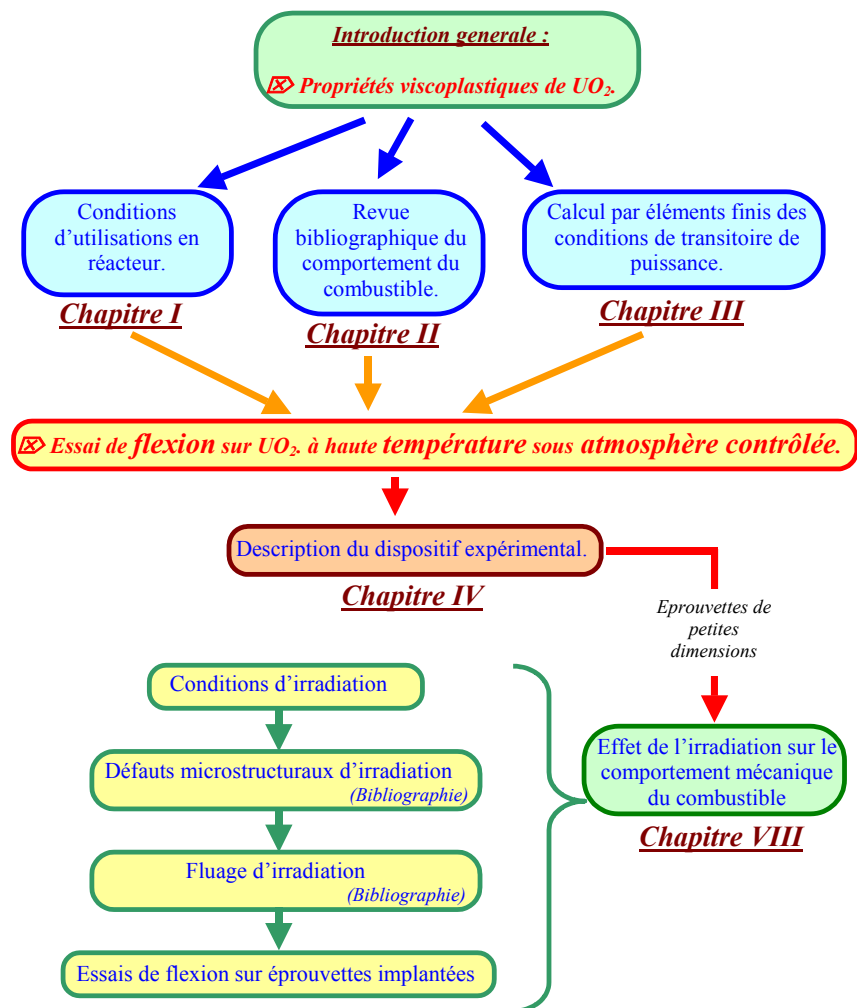
Nous avons simplifié le problème en considérant le combustible seul par un calcul axisymétrique (donc en ne tenant pas compte de la fracturation de la pastille), en négligeant les effets de l'irradiation sur la loi de fluage. Un premier calcul en élasticité a montré que, lors du transitoire de puissance, la répartition des contraintes est identique à celle observée en régime de base. Par contre leur niveau est nettement plus élevé. De même il a mis en évidence un très fort risque de rupture radiale du combustible en fin de rampe, dû à une amplification des contraintes de tension de plus d'un facteur 2 en périphérie.

Nous avons ensuite effectué un calcul élasto-viscoplastique dans les mêmes conditions, afin de le comparer aux résultats obtenus en élasticité. Il en ressort que la relaxation attendue du matériau ne permet pas de prévenir une rupture radiale du combustible en fin de montée de puissance. Lors du maintien à puissance élevée, il y a une diminution des contraintes, notamment près des évidements. Il en résulte un écoulement de la matière principalement le long de l'axe de la pastille. Au retour à un régime de base, il apparaît des contraintes dans le combustible dont l'origine est plus due aux incompatibilités de déformation qu'au gradient thermique. Ce calcul donne des résultats analogues à ceux fournis par le code METEOR, sur la relaxation des contraintes. Par contre ils diffèrent de par leur construction. Ainsi METEOR en tenant compte de la fissuration obtient des contraintes plus réalistes. En revanche il ne tient pas compte du fluage primaire du matériau. De plus sa modélisation uniaxiale ne peut mettre en évidence l'écoulement axial de matière, et le comblement des évidements de la pastille.

Pour obtenir des résultats plus réalistes il faudrait passer par une simulation 3D du combustible. La description du comportement viscoplastique de l'oxyde n'est pas suffisante ; il faut connaître également ses aptitudes vis-à-vis de la fissuration.

9 Essais sur éprouvettes irradiées aux ions





- 9 ESSAIS SUR EPROUVETTES IRRADIEES
 - 9.1 CONDITIONS D'IRRADIATION
 - 9.2 DEFAUTS MICROSTRUCTURAUX D'IRRADIATION, RELATION AVEC LE COMPORTEMENT MECANIQUE
 - 9.3 FLUAGE D'IRRADIATION
 - 9.4 ESSAIS DE FLEXION SUR EPROUVETTES IMPLANTEES AUX IONS KR
 - 9.5 CONCLUSIONS

Notre dispositif expérimental a été conçu dans le but de caractériser le fluage de petits échantillons, découpés dans des pastilles réelles de combustible. Cette géométrie permet de tester de nombreuses autres céramiques nucléaires se présentant sous forme de pastilles analogues à celles de dioxyde d'uranium. Cela concerne bien sûr d'autres types de combustibles, mais également les absorbants neutroniques, les cibles pour l'incinération des actinides. Par ailleurs, les dimensions réduites permettent de prélever plusieurs éprouvettes dans chaque pastille, ce qui limite fortement le volume de matière nécessaire aux essais.

Une autre perspective intéressante ouverte par notre dispositif expérimental concerne l'essai de matériaux implantés aux ions, simulant de matériaux irradiés en réacteur. En effet, il n'est pas simple de caractériser les effets d'une irradiation réelle. Ces études requièrent des séjours en réacteur très longs, et leur mise en œuvre et leur interprétation sont particulièrement fastidieuses. Les examens après séjour en réacteur sont également compliqués par l'activité des matériaux testés. Une alternative consiste à simuler l'irradiation des matériaux en utilisant des flux d'ions ou d'électrons, susceptibles de produire en quelques heures des dommages similaires à ceux que l'irradiation en réacteur provoquerait en plusieurs années. L'avantage majeur de l'irradiation en accélérateur réside dans le fait que, par rapport à un séjour en réacteur, les matériaux irradiés ne sont quasiment pas activés, et ne réclament donc aucune précaution particulière pour être observés ou testés. Une limite de cette simulation est la faible pénétration des ions qui ne permet de traiter que des profondeurs de matière très limitées.

Dans cette dernière partie de la thèse, nous allons dans un premier temps décrire les conditions d'irradiation utilisées, et procéder à une étude bibliographique de l'évolution de la microstructure de la céramique implantée. Le manque de temps et la complexité des techniques nécessaires pour caractériser de telles éprouvettes ne nous ont pas permis d'observer nos échantillons. Cette évolution de la microstructure peut être reliée au comportement mécanique du matériau. Ensuite un bref rappel sur l'irradiation, et ses conséquences sur le fluage, sera effectué en prenant en compte des équations spécifiques à nos conditions d'irradiation. Enfin la dernière partie concernera les essais de flexion que nous avons réalisés sur des éprouvettes implantées et l'interprétation des courbes de fluage obtenues.

9.1 Conditions d'irradiation

Deux lames d'oxyde d'uranium ($4 \times 12 \times 0,5 \text{ mm}^3$) ont été irradiées au GANIL^{xiv}, à Caen, en Sortie Moyenne Energie, à température ambiante, sur une seule face. Les ions utilisés sont du Krypton, de masse atomique 78 et d'énergie 790 MeV. Les fluences d'irradiation obtenues sont homogènes sur la surface et sont de $6 \cdot 10^{12} \text{ ions.cm}^{-2}$ et $8 \cdot 10^{13} \text{ ions.cm}^{-2}$. Le code de calcul SRIM^{xv}

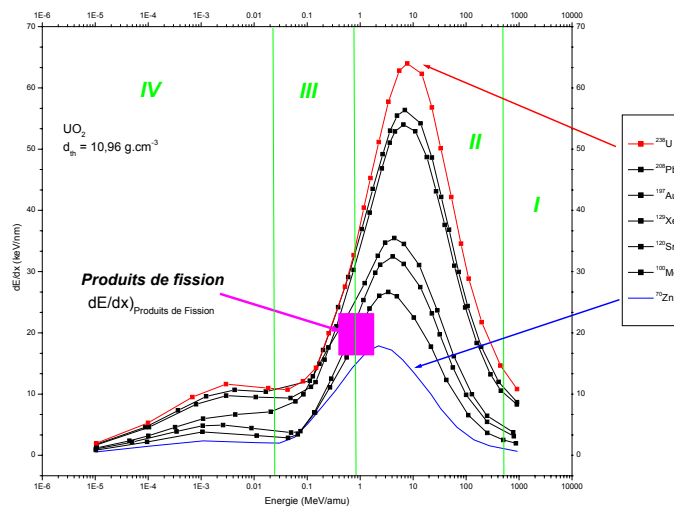
^{xiv} <http://www.ganil.fr>

^{xv} <http://www.srim.org>

permet de mieux appréhender le comportement des ions lors de cette irradiation. Ce logiciel est basé sur la technique de Monte-Carlo en utilisant un traitement de mécanique quantique à chaque interaction entre les particules incidentes et la cible. SRIM résulte des travaux de Biersack, (Biersack 1980) sur les algorithmes de calcul, et de Ziegler sur les théories d'interactions des particules avec la matière, (Ziegler 1985). Une simulation de type Monte-Carlo consiste à introduire une fonction de répartition pour les paramètres définissant la trajectoire. Alors, à chaque itération de calcul, i.e. à chaque collision élastique ou inélastique avec la matière, un nombre tiré au hasard permet de définir la trajectoire résultante à l'aide de ces fonctions de répartition. Pour approfondir cet aspect nous conseillons au lecteur ces références : (Bishop 1960, Berger 1963).

Ainsi pour notre faisceau, le pouvoir d'arrêt électronique calculé $\left. \frac{dE}{dx} \right|_{Elect}$ est de 20 keV.nm⁻¹

en début de parcours. Cette valeur est tout à fait comparable aux pertes d'énergie des produits de fission en réacteur, dont une représentation est donnée par la Figure 9.1, (Wiss 1997), dans la fenêtre rectangulaire magenta. Cette dernière s'étend de 15 à 25 keV.nm⁻¹. Dans ces conditions, comme le montrent les résultats des simulations, résumés sur la Figure 9.2, les ions sont implantés sur une profondeur d'environ 45 µm, soit 10% de l'épaisseur de l'éprouvette. Sur cette figure, la trajectoire des ions est représentée dans les trois plans de l'espace.



(Wiss 1997)

Figure 9.1 - Pertes d'énergie de différents ions dans UO₂.

Au cours de sa pénétration dans la matière, l'ion Kr n'a pas la même influence sur la céramique. Dans un premier temps, comme schématisé sur la Figure 9.3, lorsque les ions sont rapides, les particules ralentissent et perdent leur énergie par excitation et ionisation de la cible. Au fur et à mesure que l'énergie des ions Kr décroît, les collisions avec les atomes du combustible deviennent prédominantes, engendrant nombre de déplacements atomiques, comme décrits par la Figure 9.4. Après la perte totale de leur énergie cinétique, les ions restent dans le réseau sous forme d'impuretés.

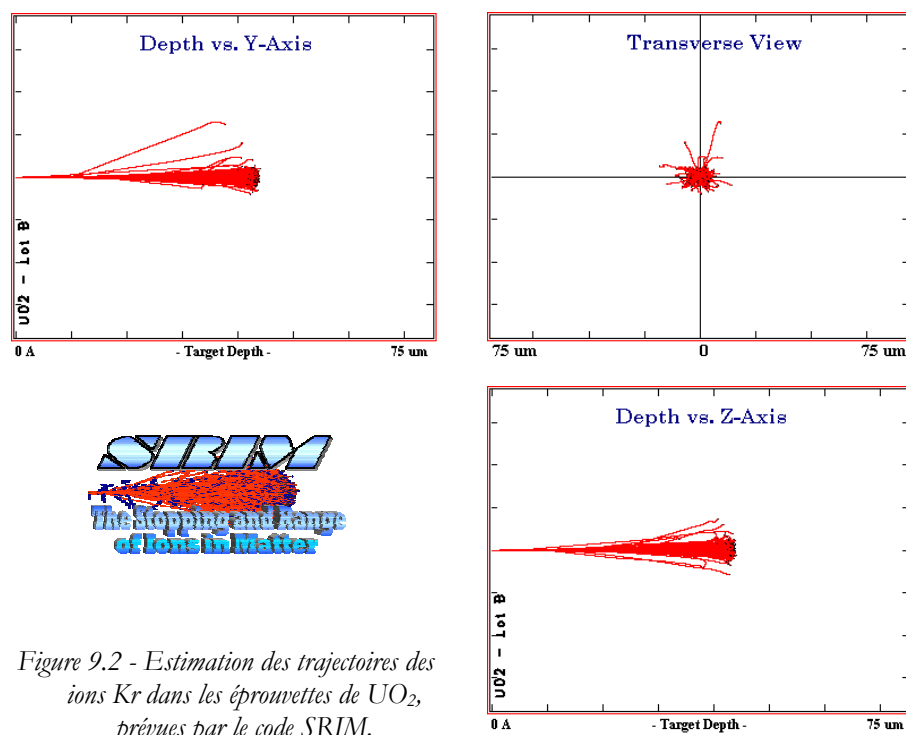


Figure 9.2 - Estimation des trajectoires des ions Kr dans les éprouvettes de UO_2 , prévues par le code SRIM.

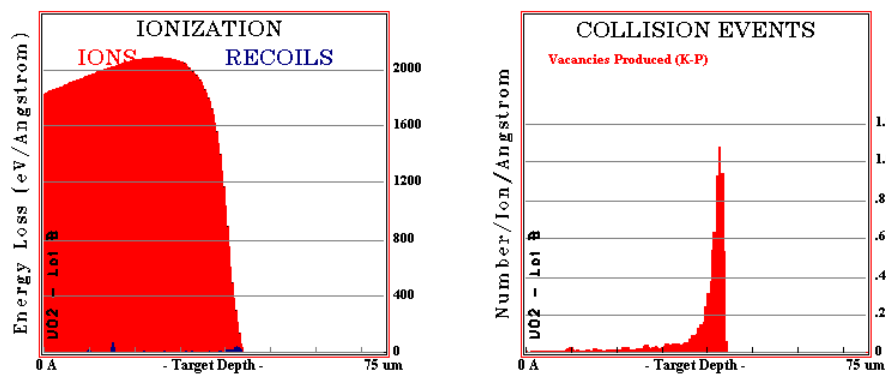


Figure 9.3 - Ionisations et déplacements induits par le faisceau d'ions Kr dans UO_2 , prévus par le code SRIM.

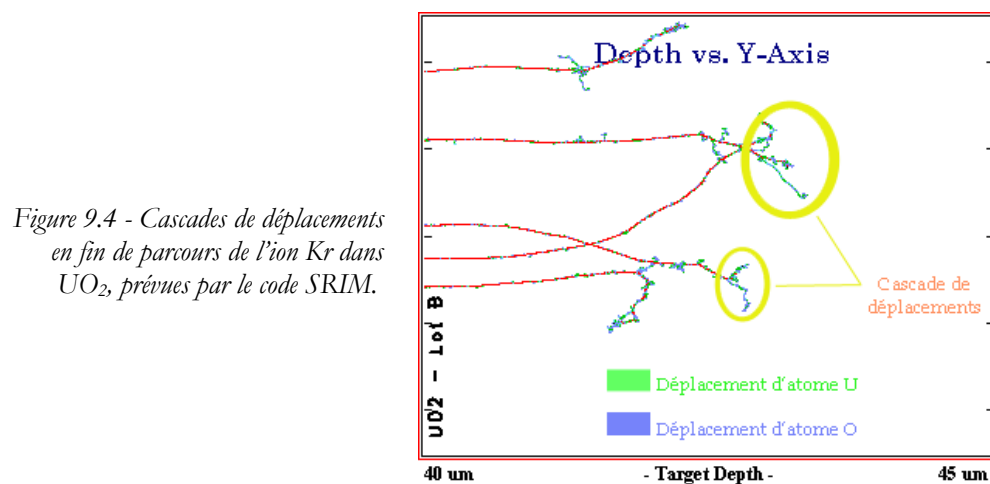


Figure 9.4 - Cascades de déplacements en fin de parcours de l'ion Kr dans UO_2 , prévues par le code SRIM.

9.2 Défauts microstructuraux d'irradiation, relation avec le comportement mécanique

Près de la surface de l'éprouvette, les défauts sont essentiellement dus au passage des ions, et prennent la forme de traces cylindriques dans la céramique, qui présentent quelques analogies avec les pointes de fission et d'explosion coulombienne. En fin de parcours, il y a beaucoup plus de cascades de déplacements, et la recombinaison des différents défauts créés peut engendrer des amas fortement perturbés autour des ions Kr implantés. Pour plus de précisions, le lecteur peut se référer au deuxième chapitre de ce mémoire, notamment la partie traitant de l'influence de l'irradiation en réacteur sur le combustible.

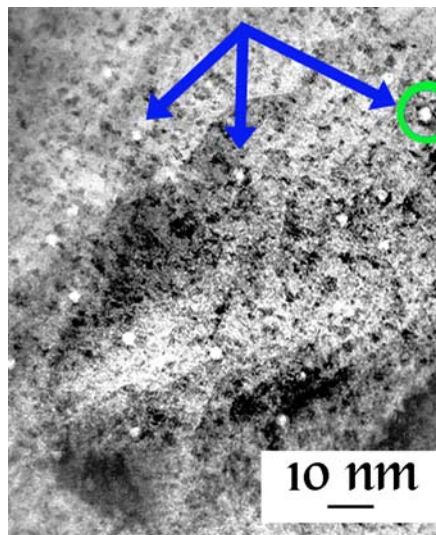
Depuis les années soixante, plusieurs auteurs ont caractérisé l'endommagement du dioxyde d'uranium par irradiation. Les retours de combustible usagé ont permis récemment de nombreuses caractérisations microstructurales (MET, MEB) et mécaniques (dureté), (Matzke 1997, Matzke 2000), mais c'est surtout les implantations d'ions qui ont permis des études plus pointues. Ainsi les observations faites par certains auteurs, (Matzke 1996), montrent que UO_2 ne s'amorphise pas, même pour de forts taux de déplacements à des fluences élevées à température ambiante. Pour de très fortes énergies incidentes, de l'ordre du GeV, il peut y avoir une polygonisation, une subdivision des grains en sous-structures de très petites tailles, se rapprochant de la microstructure du RIM observée en réacteur (Schlutig 2001). Ce dernier point reste sujet à discussions. En résumé, la microstructure du dioxyde (taille de grain, porosité) évolue peu sous irradiation ionique. Par contre, sous rayonnement, la densité de défauts ponctuels varie significativement.

Par la suite, nous parlerons d'endommagement uniquement pour traiter des effets des défauts ponctuels à l'intérieur des grains. Le terme d'endommagement ne sera pas utilisé dans le sens habituel à l'échelle du grain (cavitation, microfissure), mais ici à une échelle beaucoup plus réduite à l'intérieur même des grains, à l'échelle des défauts ponctuels.

(Wiss 1997) a étudié les mécanismes d'endommagement du dioxyde d'uranium par irradiation aux ions, dans des conditions comparables aux nôtres. Il a notamment mis en évidence, grâce à la microscopie électronique à transmission, de nombreuses traces, dont un exemple est donné sur la Figure 9.5.

Figure 9.5 – Micrographie en transmission de UO_2 irradié avec des ions U de 1 300 MeV.

Le pouvoir d'arrêt électronique du faisceau est de $56 \text{ keV} \cdot \text{nm}^{-1}$. Les traces correspondent aux spots blancs. (Matzke 2000).



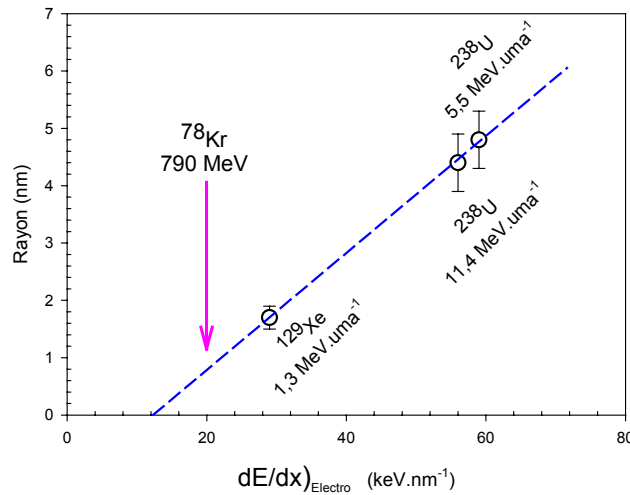


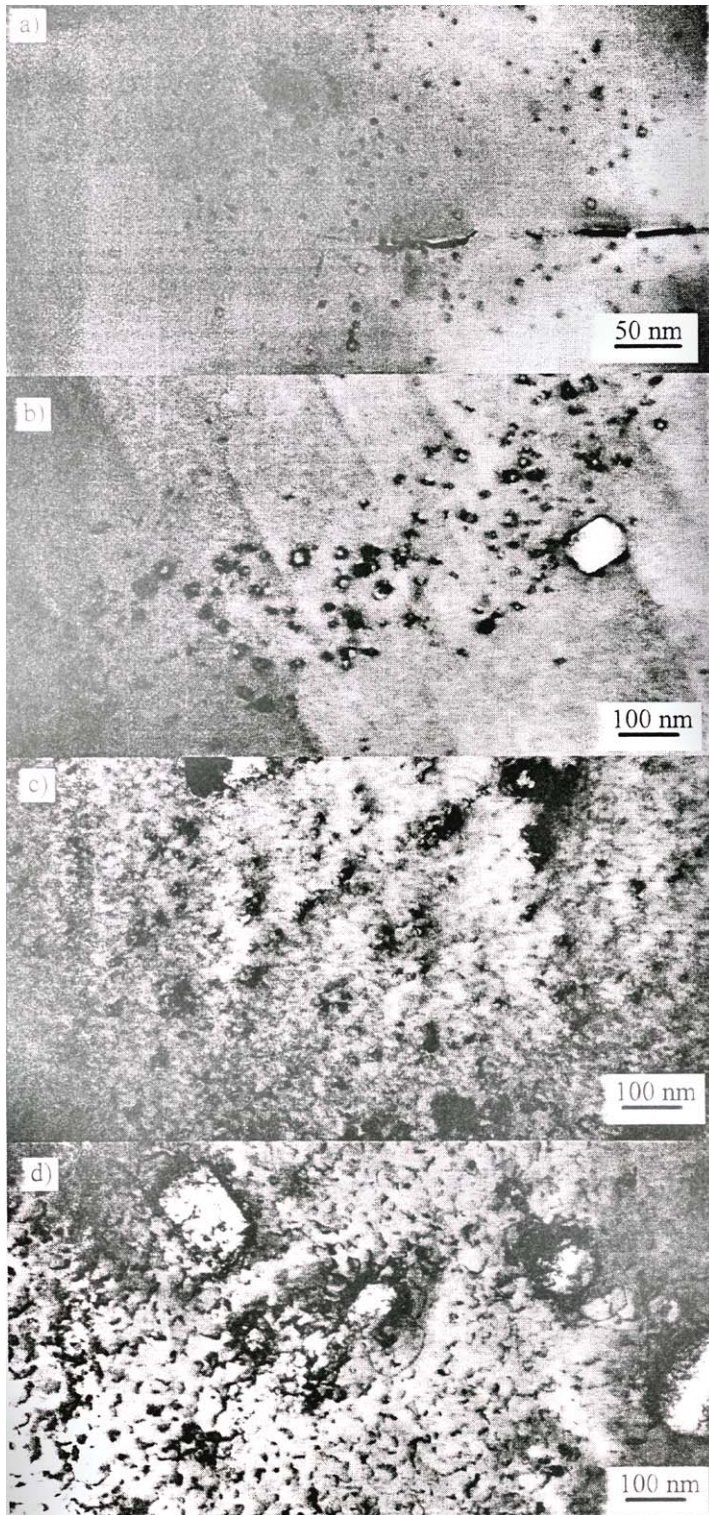
Figure 9.6 - Evolution de la taille des traces, observées en MET, en fonction du pouvoir d'arrêt électronique.

(Wiss 1997)

Wiss a étudié l'évolution du diamètre de ces traces en fonction du pouvoir d'arrêt des faisceaux utilisés, dont une illustration est fournie par la Figure 9.6. Ce graphique donne une évaluation, à environ 1 nm, du diamètre des traces qui seraient observées dans les éprouvettes que nous utilisons. En plus de ce paramètre énergétique qu'est le pouvoir d'arrêt électronique, un facteur important est le temps d'irradiation ou la dose d'ions reçue par les lames : c'est la fluence qui rend compte de cette durée. La Figure 9.7 montre l'évolution de la structure endommagée en fonction de la fluence d'irradiation par des ions Sn de 403 MeV.

Des boucles de dislocations apparaissent pour une fluence de $5 \cdot 10^{11}$ ions.cm⁻². Ensuite, on observe une forte augmentation de la concentration en défauts avec la dose reçue. Cette structure est évidemment hors équilibre. Une fois créés, selon la température, ces défauts peuvent migrer et interagir avec d'autres défauts pour s'annihiler ou former des défauts plus complexes. L'évolution de la population de ces défauts au cours de recuits est bien connue dans les métaux (Lucasson 1984). La guérison se produit classiquement en cinq étapes. Le stade ultime correspond à la disparition complète des défauts par autodiffusion, pour environ la moitié de la température de fusion du matériau. Les céramiques ont beaucoup moins été étudiées. (Morillo 1985) effectue une synthèse de quelques travaux concernant l'influence de recuits après irradiation sur la résistivité électrique, utilisée comme indicateur de la concentration en défauts de l'échantillon. Les résultats sont assez différents d'un auteur à l'autre, et dépendent fortement de la céramique nucléaire utilisée. De plus, les températures de chauffe ne dépassent pas 1 000°C. Lors de ces recuits, les ions implantés jouent le rôle de clusters, piégeant les défauts. Les traces du passage des ions sont supposées complètement effacées par une forte élévation de température. Pour voir cette évolution de la microstructure, il faut atteindre une température suffisamment élevée pour autoriser la mobilité des défauts dans la céramique : pour UO₂, cette transition est estimée aux environs de 1 100°C (Baron 2002, Beauvy 2002). Ce seuil de température peut être relié avec une forte accélération du relâchement des gaz de fission dans le combustible. Au vu de ces observations, on peut s'attendre à ce que les éprouvettes implantées fluent plus rapidement à basse température. Par contre, aux plus hautes températures, il y aurait un durcissement par les ions implantés, qui devrait conduire à un potentiel de déformation visqueuse moindre pour les éprouvettes irradiées.

Dans le cas particulier de nos éprouvettes irradiées, ces hypothèses mériteraient d'être confortées par des observations microscopiques en balayage et en transmission.



$5 \cdot 10^{10} \text{ ions.cm}^{-2}$

$5 \cdot 10^{11} \text{ ions.cm}^{-2}$

$5 \cdot 10^{12} \text{ ions.cm}^{-2}$

$3 \cdot 10^{13} \text{ ions.cm}^{-2}$

Les particules utilisées sont des ions Sn de 403 MeV, ce qui correspond à un pouvoir d'arrêt électronique d'environ 30 keV.nm^{-1} . (Wiss 1997).

Figure 9.7 - Micrographies MET d'échantillons UO_2 irradiés par des ions Sn à différentes fluences.

9.3 Fluage et irradiation

Les matériaux sous irradiation en réacteur sont le siège d'une compétition entre processus d'endommagement et processus de guérison. Cette compétition pilote le comportement des matériaux et règle l'évolution de leurs propriétés.

L'irradiation a deux effets principaux sur les propriétés en fluage du matériau. D'une part, avec l'introduction des nombreux défauts, il y a accélération des vitesses de déformation sous flux ; d'autre part, on assiste à l'apparition d'un fluage athermique d'irradiation proprement dit. Pour le régime stationnaire, ces influences peuvent être mises sous la forme :

$$\dot{\epsilon}_{\phi} = \underbrace{\dot{\epsilon}_{\phi=0}^{Thermique}}_{\dot{\epsilon}_{LPCC}} \underbrace{k_{\phi}}_{(1+3,86 \cdot 10^{-18} \phi)} + \underbrace{\dot{\epsilon}_{\phi}^{Irradiation}}_{1,87 \cdot 10^{-18} \sigma \dot{\phi} e^{-\frac{8100}{RT}}}$$

Partie A *Partie B*

$$= \dot{\epsilon}_{LPCC} (1 + L \phi) + 1,87 \cdot 10^{-18} \sigma \dot{\phi} e^{-\frac{8100}{RT}}$$

Le terme multiplicatif $(1 + L\phi)$ a été introduit par (Leclercq 1999) afin de rendre compte de l'accélération du fluage thermique. Nous avons effectué des mesures sur des éprouvettes issues d'un Lot B, qui, lorsque le matériau n'est pas irradié, doit suivre la loi dite LPCC. La partie de fluage d'irradiation proprement dite est donnée par (Basini 2002). Ce fluage dit d'irradiation (partie B) tient compte de la « vitesse d'irradiation » $\dot{\phi}$; il ne peut donc être mis en évidence que sous flux ; d'où la difficulté pour l'étudier expérimentalement. Suivant la température et la contrainte appliquée, le fluage sous flux a une importance variable. Sur la Figure 9.8 est reporté le rapport entre les vitesses de fluage sous et hors irradiation pour une fluence de $6 \cdot 10^{12}$ ions.cm⁻², avec un taux de fission de $1,2 \cdot 10^{13}$ ions.cm⁻³.s⁻¹, comparable à la figure 1.10.

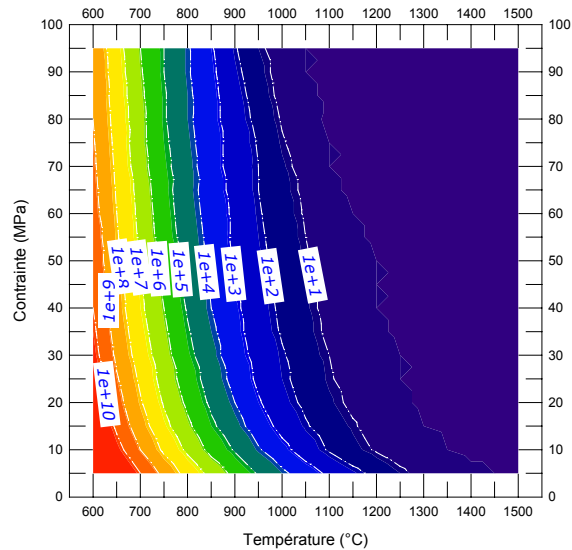
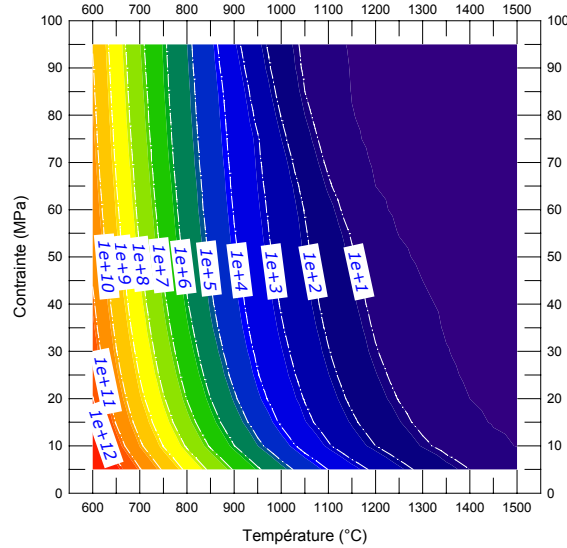


Figure 9.8 - Rapport des vitesses de déformation sous flux et hors pile pour une fluence de $6 \cdot 10^{12}$ ions.cm⁻² et une « vitesse d'irradiation » de $1,2 \cdot 10^{13}$ ions.cm⁻³.s⁻¹.

Les déformations dues à l'irradiation sont largement prédominantes pour les basses températures (typiquement jusqu'à 900°C). Suivant la contrainte, la température où le fluage thermique devient significatif s'échelonne entre 950°C et 1 250°C. Pour une dose d'irradiation plus élevée, comme l'illustre la Figure 9.9, la température de transition augmente : elle s'étage alors entre 1050°C et 1 400°C.

Figure 9.9 - Rapport des vitesses de déformation sous flux et hors pile pour une fluence de $8 \cdot 10^{13} \text{ ions.cm}^{-2}$ et une « vitesse d'irradiation » de $1,2 \cdot 10^{13} \text{ ions.cm}^{-3}.s^{-1}$.



Dans notre cas plus simple, la « vitesse d'irradiation » est nulle ; puisque nous effectuons nos essais hors flux. Alors la composante du fluage d'irradiation correspondante (partie B) est nulle également. En fait dans cette partie nous allons plus exactement nous intéresser à l'**activation du fluage thermique par l'irradiation** (partie A) :

$$\dot{\epsilon}_{\phi} = \dot{\epsilon}_{LPCC} (1 + 3,86 \cdot 10^{-18} \phi)$$

9.4 Essais de flexion sur éprouvettes implantées aux ions Kr

Les éprouvettes irradiées sont testées en fluage de telle sorte que la face irradiée se trouve en traction. Afin de favoriser les comparaisons, les éprouvettes irradiées ont été testées dans des conditions analogues à certaines éprouvettes vierges : sous 60 MPa à 1 350°C. La Figure 9.10 illustre la différence de comportement observée entre les matériaux. Plus le matériau est irradié, moins se déforme l'éprouvette. A 1 350°C, il y a un durcissement du matériau en accord avec les raisons évoquées précédemment.

Pour vérifier la différence de comportement en température, un barreau a été maintenu sous une charge constante de 60 MPa, à différentes températures. Chaque palier en température s'étend sur plusieurs dizaines d'heures. La réponse du matériau est décrite par la Figure 9.11. La vitesse de fluage de l'éprouvette est fortement liée à la température. Aux basses températures, le barreau flue ; lorsque la température augmente la déformation de l'éprouvette semble bloquée, puis elle est à nouveau activée à 1 350°C. La vitesse de déformation est même négligeable à 1 000 et 1 100°C.

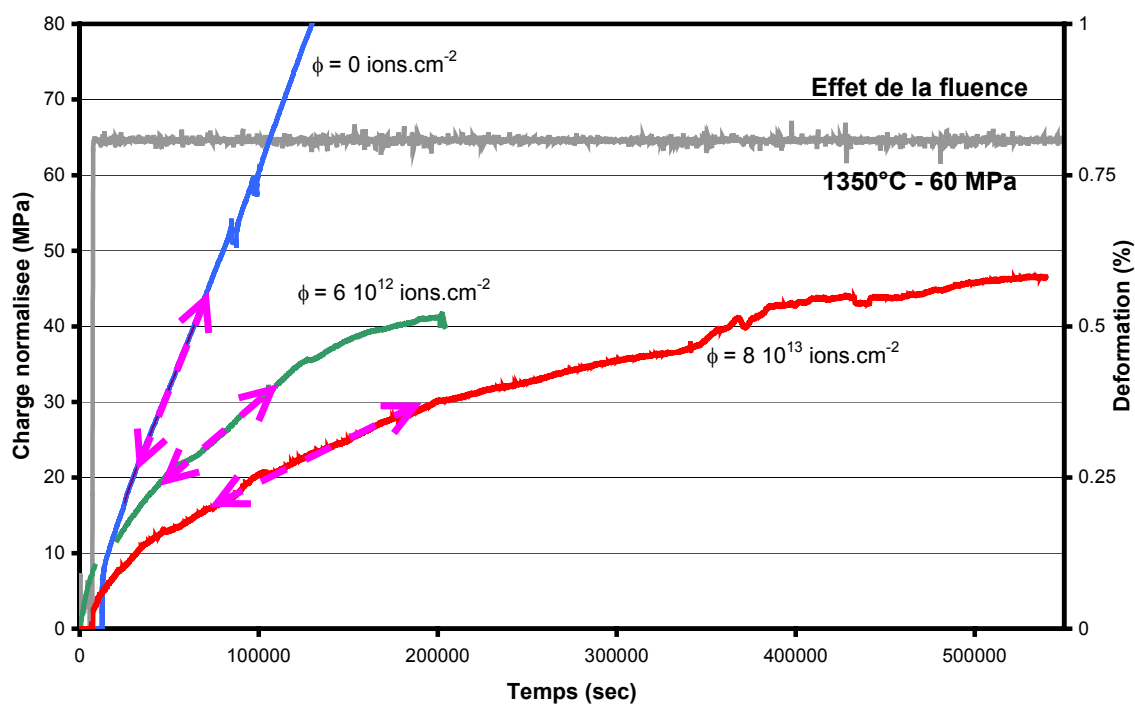


Figure 9.10 - Effet de la fluence sur le fluage sous 60 MPa à 1 350°C de UO₂ en flexion.

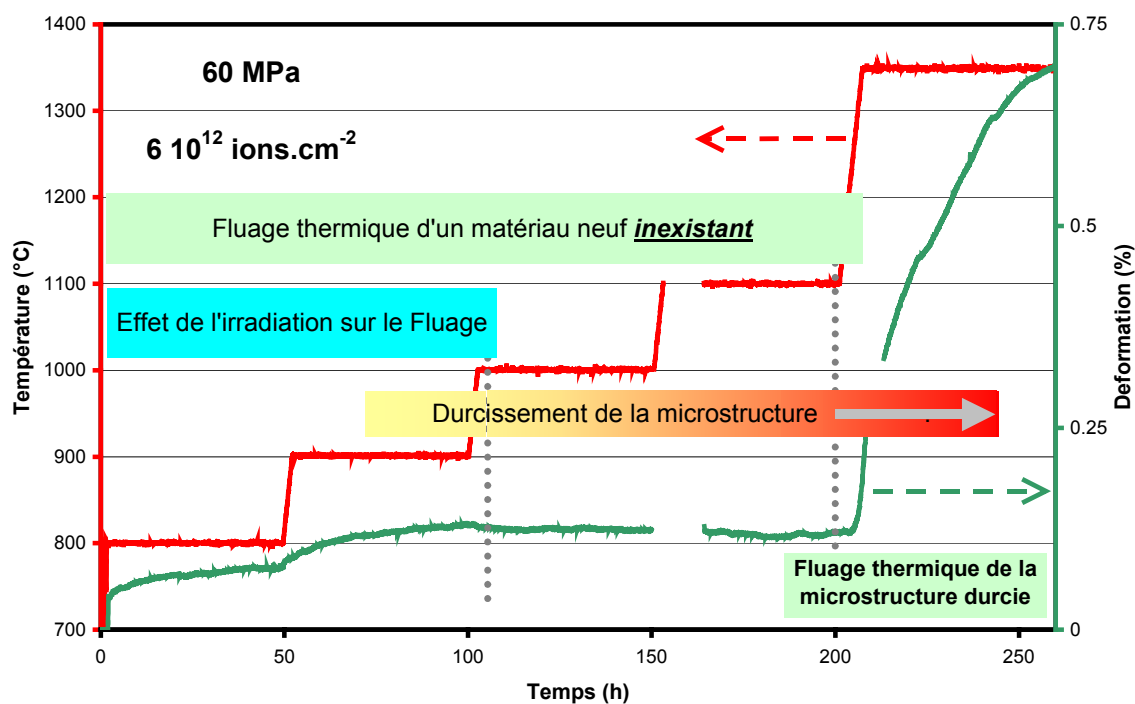


Figure 9.11 - Fluage d'une éprouvette irradiée à $6 \cdot 10^{12} \text{ ions.cm}^{-2}$ sous 60 MPa en flexion en fonction de la température.

Afin d'établir une comparaison entre les comportements, la Figure 9.12 présente les vitesses de déformation stationnaires en fonction de la température et de la fluence. Le combustible neuf est supposé suivre une loi de la forme :

$$\dot{\epsilon} \propto \sigma^{1.73} e^{-\frac{540 \text{ kJ}}{RT}}$$

Les vitesses de fluage à basse température semblent quasiment indépendantes de la température, ou pour le moins, présentent une très faible énergie d'activation apparente. On ne peut pas simplement conclure sur ce type d'essai. En effet les éprouvettes peuvent être assimilées à des matériaux bicouches. Encore une fois, si il existe des relations simples pour décrire l'essai de flexion en élasticité, il n'y a pas de solutions analytiques pour prévoir le comportement de chaque « couche » en viscoplasticité. Pour mieux expliciter le comportement du matériau implanté il faut avoir recours à une simulation numérique de cet essai.

Toutefois, ces conditions d'essai mettent en évidence un fluage typique dû à l'état particulier du matériau irradié. Les vitesses relevées sont 10^7 fois plus grandes que celles dues au fluage thermique du matériau neuf.

A plus haute température, à 1 350°C, le faible nombre d'essais effectués ne permet pas de conclure sur l'influence de la dose d'irradiation sur la vitesse de fluage stationnaire. Il semble apparaître, par exemple sur la Figure 9.12, un effet de saturation similaire aux phénomènes rencontrés dans les matériaux durcis par précipitation, où la fluence jouerait un rôle équivalent à la concentration en impuretés.

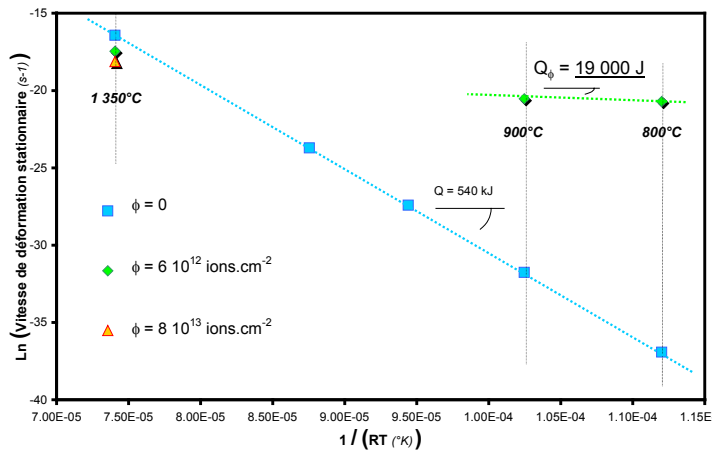
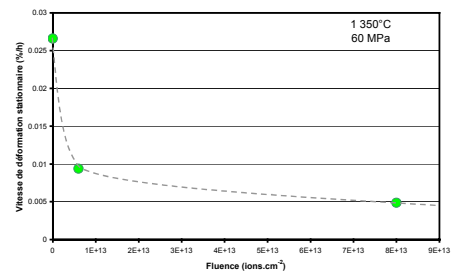


Figure 9.12 - Vitesses de déformation stationnaires fonction de la température et de la fluence sous 60 MPa.



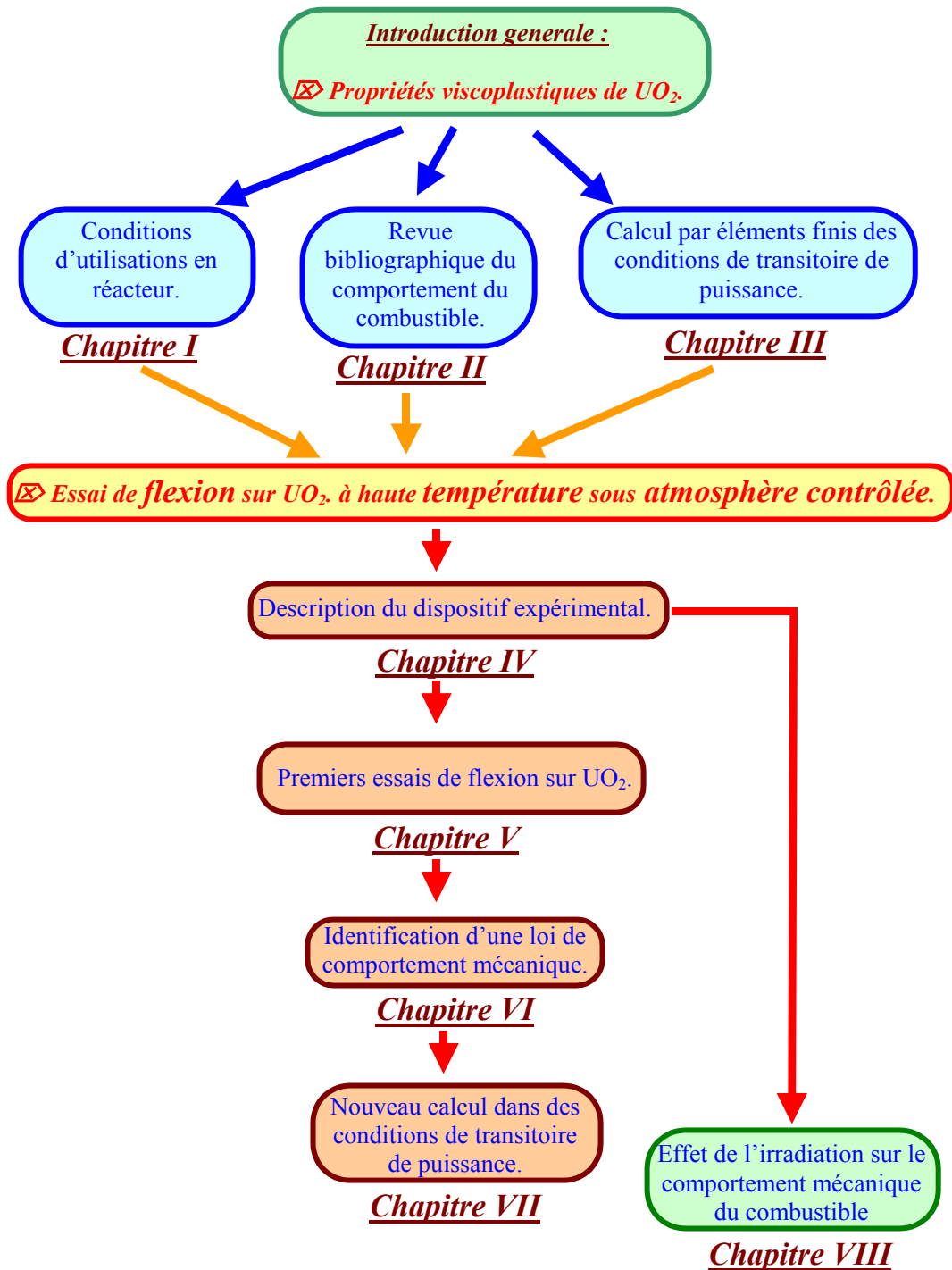
9.5 Conclusions

L'essai de flexion sur des éprouvettes de faible entraxe permet donc de mettre en évidence l'activation du fluage thermique de UO_2 par l'irradiation. En choisissant au mieux les conditions d'irradiation, il est possible d'implanter des ions sur une profondeur d'environ 200 μm . Au final, des éprouvettes irradiées sur l'ensemble du volume pourraient être testées en flexion, et une loi prédictive plus précise du comportement sous irradiation du dioxyde d'uranium pourrait être identifiée. Ce travail serait à mettre en parallèle avec une caractérisation des microstructures obtenues juste après irradiation et en fonction des différents recuits.

*« Les thèses les plus fausses sont souvent les plus belles. »
Pierre Daninos*

10 Résumé, conclusions et perspectives





Ces travaux de thèse s'inscrivent dans le cadre général des interactions pastille-gaine. En vue de minimiser ces dernières, un objectif est de caractériser, dans le but de les améliorer, la viscoplasticité du combustible UO_2 .

En effet, lors de l'utilisation d'un réacteur nucléaire à eau pressurisée (REP), le combustible vient en contact avec la gaine, engendrant dans le tube de fortes contraintes. Les risques de rupture par localisation de la déformation, peut être assistée par des phénomènes de corrosion sous contraintes, de ces premières barrières de sûreté sont multipliés lors des rampes de puissance du cœur. L'exploitant (EDF) doit assurer et démontrer l'intégrité de l'ensemble des crayons, quelles que soient les conditions de sollicitation, et souhaite prolonger les taux de combustion des combustibles, i.e. prolonger leur temps de séjour en réacteur. Pour cela, il doit notamment connaître les propriétés viscoplastiques du combustible, et disposer de lois capables de décrire son comportement dans le but de simuler le fonctionnement du cœur du réacteur.

Le but de cette thèse a été de caractériser le fluage du dioxyde d'uranium dans des conditions incidentelles de transitoires de puissance.

Les sollicitations subies par le combustible dans le cœur sont complexes car de natures variées : physique, chimique, mécanique, thermique et neutronique. Dans ces conditions, le combustible est sujet à d'importantes évolutions permanentes, dans l'espace et dans le temps, de ses propriétés, de sa microstructure, voire de son intégrité. Du fait du fort gradient thermique, les pastilles prennent une forme de diabolos et se fragmentent dès la mise en puissance du cœur. Ce gradient est également le moteur de changements microstructuraux dans le combustible. L'irradiation est un des principaux facteurs influençant l'oxyde. A l'origine même de la production de chaleur, le flux de particules engendre une hausse notable des défauts ponctuels. Cette augmentation active les phénomènes diffusionnels, comme le fluage, qui peuvent alors opérer à plus basse température. L'irradiation modifie la microstructure de la pastille, notamment dans sa périphérie, créant un « rim effect ». Cette faible épaisseur du matériau possède des propriétés spécifiques : elle est, entre autres, plus facilement déformable, créant une zone tampon entre la gaine et le combustible.

Nous nous sommes, dans un premier temps, intéressés aux résultats disponibles dans la littérature sur le comportement mécanique de UO_2 . Cet oxyde possède une structure cristallographique de type fluorine CaF_2 , dans laquelle l'ion U^{4+} est le moins mobile et va donc limiter le fluage. Ce sont surtout des essais de compression qui ont permis de caractériser le fluage de la céramique nucléaire. Le matériau possède un comportement fragile en dessous de $1\,000^\circ\text{C}$.

De nombreuses études ont prouvé que le fluage du dioxyde d'uranium est caractérisé par deux domaines, à faibles ou fortes contraintes. Pour les faibles contraintes, il est généralement admis que le dioxyde d'uranium se déforme suivant un fluage de type Coble. L'exposant de contrainte est faible, proche de l'unité, et l'énergie d'activation correspond à l'énergie de diffusion aux joints de grains. La vitesse de fluage dépend de la taille de grains. Pour les fortes contraintes, l'exposant de contrainte est très élevé, de 4 à 10, et l'énergie d'activation s'apparente à celle d'autodiffusion de U^{4+} . Les déformations sont alors contrôlées par le mouvement des dislocations. Ces exposants de contrainte élevés peuvent être expliqués en partie par l'apparition d'endommagement de la céramique lors des essais de compression. Bohaboy a fourni une première description globale du fluage stationnaire. Grâce à des essais complémentaires, le CEA a pu développer un nouveau modèle, dit LPCC 98, généralement utilisé pour simuler le fluage du combustible. Il faut noter que la plupart des modèles disponibles ont été établis dans le cas du fluage stationnaire, pour des déformations importantes (de l'ordre de plusieurs pourcents).

Pour mieux évaluer les contraintes dans la pastille, EDF ou CEA ont développé des codes de calcul spécifiques, dit globaux, CYRANO3 ou METEOR. Partant d'un de ces calculs lors des transitoires de puissance, nous avons dégagé les grandes lignes des sollicitations vues par le combustible : le cœur chaud est en compression multiaxiale alors que la périphérie plus froide, peu déformable est en traction tangentielle. Les déformations à cœur et les vitesses de déformation résultantes restent assez faibles, respectivement de l'ordre de 0,5 % et de $5 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$.

La simulation des transitoires de puissance nécessite donc l'identification de lois de comportement dans des conditions de faibles taux de déformation, et prenant en compte le fluage primaire et les contraintes de traction.

Partant de ce constat nous avons choisi de caractériser le comportement du dioxyde d'uranium en flexion. L'essai de flexion engendre une flèche importante pour des faibles taux de déformation du matériau, ce qui facilite la mesure des faibles déplacements à investiguer dans notre étude. De plus, il permet d'introduire des contraintes de traction dans le matériau. Enfin le cahier des charges de cette étude impose de prélever les échantillons directement dans les pastilles, ceci dans un souci de représentativité des essais. L'entraxe de sollicitation a donc été fixé à 10 mm.

Pour cette étude nous avons développé un dispositif spécifique de flexion trois points à haute température sous atmosphère contrôlée. L'atmosphère réductrice utilisée est de l'argon hydrogéné, (mêmes conditions expérimentales que celles qui sont utilisées au CEA), permettant d'assurer la stœchiométrie de l'oxyde. L'ensemble du dispositif est placé dans une enceinte double paroi refroidie par eau. Un four en graphite à induction indirecte permet d'atteindre les températures élevées, contrôlées grâce à un thermocouple de type WRe5% / WRe26% couplé à un régulateur Eurotherm. Les lignes de charge en céramique autorisent des températures d'essais atteignant 1500°C . La mesure des déplacements est assurée par un extensomètre Laser dédié, d'une résolution de $\pm 2 \mu\text{m}$ à haute température.

En utilisant ce dispositif, nous avons testé des éprouvettes d'épaisseur 0,5 à 1 mm, en fluage. Parmi les publications traitant du fluage de l'oxyde d'uranium, une seule a décrit le fluage stationnaire en flexion. La comparaison des vitesses de déformation du dioxyde d'uranium pour différents types de sollicitations n'a pas mis en évidence de dissymétrie de comportement. Nos essais de fluage n'ont pas révélé de déformations permanentes significatives en dessous de 1250°C . Le fluage stationnaire a pu être décrit à l'aide d'une loi de Norton avec un exposant de contrainte de 1,73 et une énergie d'activation de 540 kJ.mole^{-1} . Ces paramètres ont été confirmés en exploitant d'autres essais plus complexes. Notre loi prévoit des vitesses de déformation similaires à celles produites par la loi identifiée au CEA en compression sur le même matériau, mais ne révèlent que le seul mécanisme de déformation à basse contrainte.

Disposant alors de cette base d'essais, nous avons modélisé le comportement mécanique du combustible. Pour cela, nous nous sommes servis de l'approche thermomécanique des milieux continus de Lemaître et Chaboche. L'introduction de variables internes dans la loi décrivant un écrouissage cinématique du matériau, a permis de représenter les deux premiers stades de fluage et les phénomènes de recouvrance observés lors de déchargements partiels. L'identification a été réalisée par méthode inverse. La loi que nous avons obtenue est assez robuste : elle est capable de décrire le comportement mécanique du dioxyde d'uranium en flexion sur une large plage de température, allant de 800 à 1500°C , pour des contraintes maximales de fluage de 90 MPa, soit une vitesse de déformation stationnaire de $8 \cdot 10^{-7} \text{ s}^{-1}$. Il est toutefois important de noter que la fiabilité de cette loi est limitée par la faible base expérimentale dont nous avons disposée, particulièrement en regard de la dispersion expérimentale observée, probablement due aux faibles déformations mesurées.

Il nous a paru intéressant d'appliquer cette loi dans un calcul de transitoire de puissance. Nous avons réalisé un calcul axisymétrique d'une pastille de combustible à l'aide du code de calcul ZéBuLoN. Il en ressort que la relaxation attendue du matériau ne permet pas de prévenir une rupture radiale du combustible en début de montée de puissance. Lors du maintien à puissance élevée, il y a une diminution des contraintes, notamment près des évidements. Il en résulte un écoulement de matière principalement axial. Au retour à un régime de base, il apparaît des contraintes dans le combustible dont l'origine principale est les incompatibilités de déformation. L'applicabilité de notre loi à la description de transitoires de puissance a donc été démontrée. Pour obtenir des résultats plus réalistes il faudrait passer par une simulation 3D du combustible, prenant en compte la fragmentation de la pastille. Une connaissance des critères d'endommagement et de fissuration du combustible serait également nécessaire pour prolonger cette étude.

L'application finale de notre dispositif expérimental a été de tester des éprouvettes implantées aux ions. La faible épaisseur de nos échantillons permet de mettre en évidence l'effet d'une irradiation sur le fluage d' UO_2 , sur des éprouvettes implantées sur une profondeur d'environ 50 μm . Ce travail serait bien sûr à compléter par une caractérisation des microstructures obtenues juste après irradiation et en fonction des différents recuits.

Les principales idées à retenir et la démarche de cette thèse sont décrites dans la Figure 10.1.

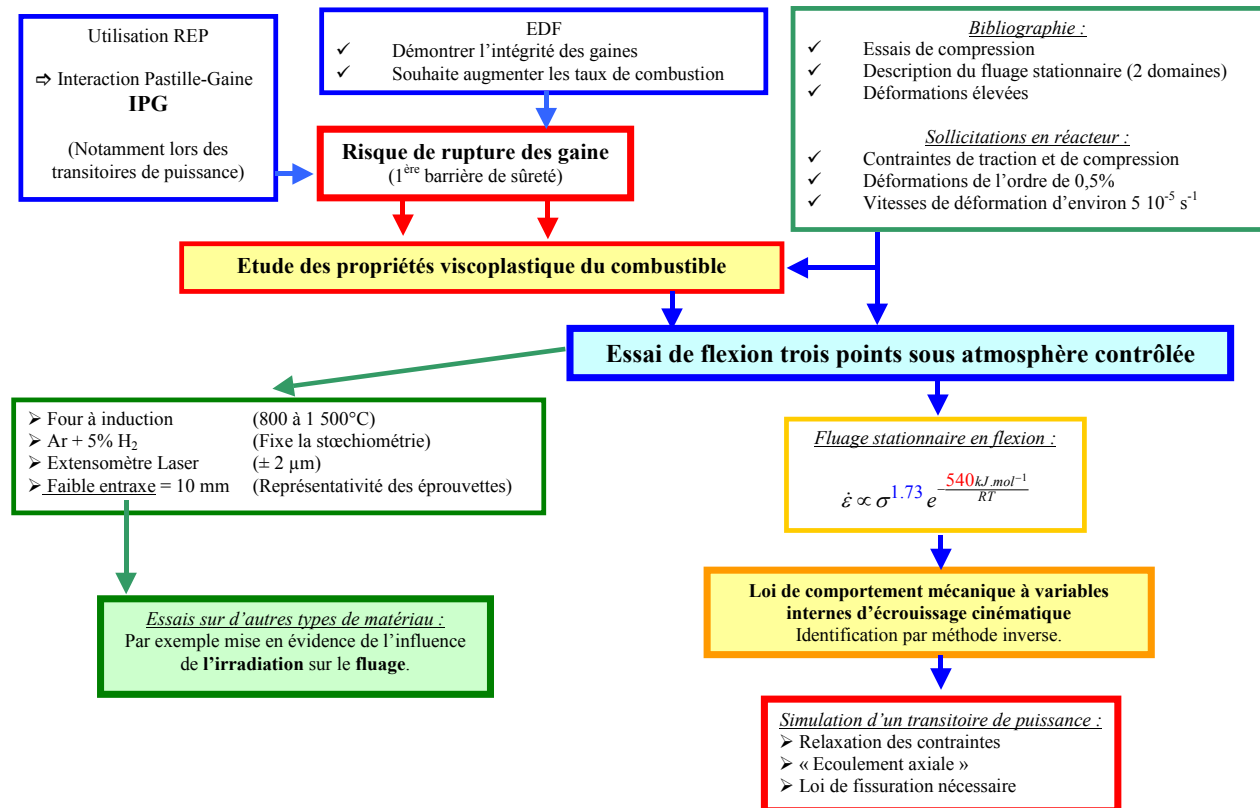


Figure 10.1 - Résumé de la thèse.

Un prolongement nécessaire à ce travail serait avant toute chose d'en étoffer la base expérimentale, afin de rendre notre loi de comportement plus robuste. Des observations microstructurales seraient également nécessaires afin de confirmer les mécanismes de déformation mis en jeu, révéler un éventuel endommagement, et vérifier la symétrie du comportement en fluage. Afin de simuler correctement les transitoires de puissance du cœur, il serait enfin indispensable d'avoir recours à une simulation 3D des fragments de la pastille.

Ce travail ouvre également d'intéressantes perspectives, associées à la possibilité de découper les échantillons de très petite taille dans des pastilles réelles. Notre dispositif d'essai offre la possibilité de tester des nombreux autres matériaux, notamment des céramiques irradiées aux ions.

Enfin par nature du dispositif développé, il serait assez simple de l'utiliser pour obtenir des caractéristiques plus précise du comportement du dioxyde face à la fissuration.

11 Bibliographie



- Ackermann R.J., Rauth E.G., Chandrasekharaiah M.S., 1969**, , J. Phys. Chem., vol. 73, n°4, pp. 762.
- Alamo A., Lefebvre J.M., Soullard J., 1978**, Déformation plastique du bioxyde d'uranium - Observation des sous-structures de dislocations, Journal of Nuclear Materials, vol. 75, pp. 145-153.
- Armstrong W.M., Irvine W.R., Martinson R.H., 1962**, Creep deformation of stoichiometric uranium dioxide, Journal of Nuclear Materials, vol. 7, n°2, pp. 133-141.
- Ashby M.F., Gandhi C., Taplin D.M.R., 1979**, , Acta metallurgica, vol. 27, pp. 699.
- Bailly H., 1996a**, Généralités sur le combustible et les études de combustible, Le combustible nucléaire des réacteurs à eau sous pression et des réacteurs à neutrons rapides, ed. Bailly H., Menessier D., Prunier C., Eyrolles, Paris, pp. 1-53.
- Bailly H., 1996b**, La fabrication du combustible, Le combustible nucléaire des réacteurs à eau sous pression et des réacteurs à neutrons rapides, ed. Bailly H., Menessier D., Prunier C., Eyrolles, Paris, pp. 55-80.
- Bailly H., Ménessier D., Prunier C., 1996c**, Le combustible nucléaire des réacteurs à eau sous pression et des réacteurs à neutrons rapides, Paris, Eyrolles.
- Bannister M.J., 1967**, , J. Nucl. Mater., vol. 24, n°3, pp. 340.
- Bannister M.J., Buykx W.J., 1975**, , J. Nucl. Mater., vol. 55, n°3, pp. 345.
- Baron D., 1999a**, Notions de physique nucléaire et application aux réacteurs., Cours Ecole Centrale de Nantes, EDF.
- Baron D., Bouffieux P., 1999b**, Le crayon combustible des Réacteurs à Eau pressurisée de grande puissance., Cours Ecole Centrale de Nantes, EDF.
- Baron D., 2002**, Le combustible des Réacteurs Nucléaires à Eau Pressurisée, in : Seminaire CdM, Evry, octobre 2002.
- Basini V., Menard J., Mocellin A., 2002**, Mesures des propriétés mécaniques des matériaux nucléaires au CEA, in : Seminaire CdM, Evry, ENSMP.
- Beauvy M., 2002**, Conversation privée, CEA Cadarache - DEC / SESC.
- Belle J., 1969**, Oxygen and uranium diffusion in uranium dioxide, Journal of Nuclear Materials, vol. 30, pp. 3-15.
- Berger M.J., 1963**, Methods in computational physics, New-York, Academic Press.
- Biersack J., Haggmark L., 1980**, , Nucl. Instr. Meth., vol. 174, pp. 257.
- Bishop H.E.** History and development of Monte Carlo method, NBS special publication.
- Bohaby P.E., Asamoto R.R., Conti A.E., 1969**, Compressive creep characteristics of stoichiometric uranium dioxide, GEAP-10054, US Atomic Energy Commission, Springfield.
- Brantley W.A., Bauer C.L., 1970**, Geometric analysis of charged dislocation in fluorite structure, Phys. State of Solids, n°40, pp. 707-715.

Brinkman J.A., 1954, , J. Appl. Phys, vol. 25, pp. 96.

Burton B., Reynolds G.L., 1973, The influence of deviations from stoichiometric composition on the diffusional creep of uranium dioxide, Acta metallurgica, vol. 21, n°Dec 73, pp. 1641-1647.

Butler G.M., Hausner H.H., 1960, Data book on uranium dioxide, Los Angeles, McBean & Co.

Cannon W.R., Langdon T.G., 1983, Review creep of ceramics- 1, mechanical characteristics, Journal of materials science, vol. 18, pp. 1-50.

Cannon W.R., Langdon T.G., 1988, Review creep of ceramics- 2, an examination of flow mechanisms, Journal of materials science, vol. 23, pp. 1-20.

Canon R.F., Roberts J.T.A., Beals R.J., 1971, Deformation of UO₂ at high temperatures, J. am. ceramic soc., vol. 54, n°2, pp. 105-112.

Carroll D.F., Wiederhorn S.M., Roberts D.E., 1989, Tensile for tensile creep testing of ceramics, J. Am. Ceram. Soc., vol. 72, n°9, pp. 1610-1614.

Chauvin N., 1996, Bases de calcul d'un élément combustible, Le combustible nucléaire des réacteurs à eau sous pression et des réacteurs à neutrons rapides, ed. Bailly H., Menessier D., Prunier C., Eyrolles, Paris, pp. 627-649.

Cochran K.M., Solomon A.A., 1983, Fabrication and creep testing of UO₂ tensile specimens, Journal of Nuclear Materials, vol. 119, pp. 162-169.

Coffinberry A.S., Miner W.N., 1961, The metal plutonium, Chicago, Chicago univ. press.

COGEMA, 1994, COGEMA et le combustible nucléaire, Les cahiers de Cogemagazine, vol. Mars.

COGEMA, 1999, Le cycle du combustible nucléaire.

Cohrt H., Grathwohl G., Thuemmler F., 1984, Non stationary stress distribution in a ceramic bending beam during constant load creep, Res. Mechanica, vol. 10, pp. 55-71.

Colin C., 1999, Transformations de phases lors d'un chauffage rapide dans un acier de construction C-Mn, note interne IRSID.

Desauer F., 1923, , Z. Physik, vol. 38, pp. 12.

Dherbey F., 2000, Déformation à chaud du dioxyde d'uranium polycristallin : des mécanismes microscopiques au comportement macroscopique, DI, CENG/DRN/DEC, INPL, Grenoble.

Dherbey F., Louchet F., Mocellin A., Leclercq S., 2002, Elevated temperature creep of polycrystalline uranium dioxide : from microscopic mechanisms to macroscopic behaviour, Acat materialia, vol. 50, pp. 1495-1505.

Diard O., 2001, Un exemple de couplage, comportement-environnement, dans les polycristaux - Application à l'interaction pastille gaine, PhD, CDM, ENSMP, Paris.

Evans A.G., Davidge R.W., 1969a, The strength and fracture of stoichiometric polycrystalline UO₂, Journal of Nuclear Materials, vol. 33, pp. 249-260.

Evans A.G., Pratt P.L., 1969b, Dislocations in the fluorite structure, The Philosophical magazine, vol. 20, pp. 1213-1237.

Feydel F., Perichon V., 2004, Hot electroaimants attraction, Alstom Interne Conférence.

Fleischer R.L., Price P.B., Walker R.M., 1975, Nuclear tracks in solids, principles and applications, Los Angeles, University of California Press.

FRAMATOME, 1998, FBFC, De l'usine au coeur du réacteur, pp. 25.

Frechinet S., 2001, Transformations et comportements du Zircaloy-4 en conditions anisothermes, PhD, CdM, ENSMP, Paris.

Fritz M., Boussuge M., Gaillieue S., Bartout J.D., 1995, Matériaux réfractaires pour récupérateur de corium, caractérisation de l'endommagement à chaud, Rapport semestriel n°1, pp. 20.

Fritz-Chateau M., 1999, Etude expérimentale et modélisation de réfractaires pour rétention de corium : réactivité, fluage et endommagement sous sollicitations thermomécaniques, PhD, CdM, ENSMP, Paris.

Frost H.J., Ashby M.F., 1982, Deformation-mechanism maps, the plasticity and creep of metals and ceramics, Oxford, Pergamon Press.

Gaillieue S., 1999, Conception d'une machine d'essais mécaniques à très haute température, Changement de catégorie, CdM-CEM.

Gandhi C., Ashby M.F., 1979, Fracture-Mechanism maps for materials which cleave : FCC, BCC and HCP metals and ceramics, Acta metallurgica, vol. 27, pp. 1565-1502.

Garcia P., Struzik C., Agard M., Louche V., 2002, Mono-dimensional mechanical modelling of fuel rods under normal and off-normal operating conditions, Nuclear engineering and design, vol. 216, pp. 183-201.

Germann L., Pacaud M., 2003, Exploitation des ressources élémentaires du haut plateau de la Combote, International Swiss-French Meeting, B'sançon, 23 juillet 2003.

Goth A., Zab B., 2003, Begegnung auf dem erneuerbaren Energien in der Nordsee, Privat Gespräch.

Gros H., 1991, Etude du comportement en fluage haute température de céramiques à base alumine, mullite et zircon, GEMPPM, INSA, Lyon.

Guedeney P., Trotabas M., Boschiero M., Forat C., Blanpain P., 1991, Caractérisation du combustible FRAGEMA à fort taux de combustion, in : International Topical Meeting on LWR Fuel Performance, Avignon, vol. 2, pp. 639.

Guerin Y., 1974, Etude par compression à hautes températures de la déformation plastique du bioxyde et du monocarbure d'uranium, CEA-R-4608, CEA, Fontenay-aux-Roses.

Guerin Y., 1975, Etude par compression à hautes températures de la déformation plastique du bioxyde d'uranium polycristallin, Journal of nuclear Materials, vol. 56, pp. 61-75.

Guerin Y., 1985, Le comportement mécanique du combustible nucléaire sous irradiation, Ann. Chim. Fr., vol. 10, pp. 405-414.

Guerin Y., 1996, Comportement en réacteur des matériaux combustibles, Le combustible nucléaire des réacteurs à eau sous pression et des réacteurs à neutrons rapides, ed. Bailly H., Menessier D., Prunier C., Eyrolles, Paris, pp. 81-163.

Hollenberg G.W., Terwilliger G.R., Gordon R.S., 1971, Calculation of stresses and strains in four-point bending creep tests, J. am. ceramic soc., vol. 54, n°4, pp. 196-199.

Ishii T., Naito K., Oshima K., 1970, , Solid State Commun., vol. 8, n°9, pp. 677.

Jacquot M., 2003, Interpretation des essais de motivation à froid in situ en milieu forestier d'excroissances naturelles, Caro Edition, pp. 1-2.

Johnston W.G., Gilman J.J., 1955, , Journal of Applied Physic, vol. 30, pp. 129.

Katz J.J., Rabinowitch E., 1954, Chemistry of uranium, IL.

Keim R., Keller C., 1977, Gmelin handbook of inorganic chemistry, ed. Verlag S., Berlin, vol. 55-C1, pp. 95-128.

Knorr D.B., Canon R.M., Coble R.L., 1989, An analysis of diffusion and diffusional creep in stoichiometric and hyperstoichiometric uranium dioxide, Acta metallurgica, vol. 37, n°8, pp. 2103-2123.

Kovba L.M., 1970, Dokl. Akad. Nauk SSR, Dokl. Chem., vol. 194, n°1, pp. 632.

Kronberg M.L., 1962, , Journal of American Ceramic Society, vol. 45, pp. 274.

Lang S.M., Knudsen F.P., Fillmore C.L., Roth R.S., 1956, , Natl. Bur. Standards Circ., vol. 568, pp. 14.

Leclercq S., 1999, Prise en compte de l'effet du flux neutronique dans la loi de comportement viscoplastique de la pastille combustible d'UO₂, EDF.

Lefebvre J.M., 1976, Contribution à l'étude de la déformation plastique d'une céramique de structure fluorine : le bioxyde d'uranium, PhD, Faculté des Sciences, Poitier.

Lefebvre X., 2003, Potentiel d'insertion du doctorant dans la vraie vie : effet de la vitesse et de l'alcool à long terme, Journal of Isabelle, Vol. Avril 2003.

Lemaignan C., Niepce J., 2000, Les céramiques nucléaires : combustibles, absorbants et matrices inertes supports, Matériaux du nucléaire, ed. TecDoc, A. Zaoui, B. Blanzat, Paris, pp. 330.

Lemaitre J., Chaboche J.L., 1988, Mécanique des matériaux solides, Paris, Dunod.

Lemarchand G., 2003, **Caractérisation mécanique et simulation numérique d'une anode tournante de rayons X**, PhD, CdM, ENSMP, Paris.

Levin E.M., McMurdie H.F., 1975, Phase diagrams for ceramists, ed. Reser M.K., American Ceramic Society, Columbus, vol. 1975 Supplement.

Levin E.M., Robbins C.R.R., McMurdie H.F., 1964, Phase diagrams for ceramists, ed. Reser M.K., American Ceramic Society, Columbus.

Levin E.M., Robbins C.R.R., McMurdie H.F., 1969, Phase diagrams for ceramists, ed. Reser M.K., American Ceramic Society, Columbus, vol. 1969 Supplement.

Levinskii Y.V., 1974, At. Energ., Sov. AT. Energy, vol. 37, n°4, pp. 1075.

Lierde W.V., Pelsmeaker J., Lecoq-Robert A., 1970, , J. Nucl. Mater., vol. 37, n°3, pp. 276.

Lucasson P., Maury F., Moser P., 1984, Production et recombinaison des défauts d'irradiation dans les métaux, Ann. Chim. Fr., vol. 9, pp. 15-47.

Luecke W.E., French J.D., 1996, Sources of strain-measurement error in flag-based extensometry, J. Am. Ceram. Soc., vol. 79, n°6, pp. 1617-1626.

Marsh G., Eccles H., 1996, Fuel fabrication, The nuclear fuel cycle, ed. Wilson P.D., Oxford university press, Oxford, pp. 41-66.

- Martin A.E., Edwards R.K., 1965**, , J. Phys. Chem., vol. 69, n°5, pp. 1788.
- Martin J.F., Contamin P., 1969**, Uranium and oxygen self-diffusion in UO₂, Journal of Nuclear Materials, n°30, pp. 16-25.
- Massard L., 2003**, Approche d'une conduite adaptée sur la neige, Delph Congress.
- Matzke H., 1996**, , Nucl Instr Meth B, vol. 65, pp. 30.
- Matzke H., Lucuta P.G., Wiss T., 2000**, Swift heavy ion and fission damage effects in UO₂, Nuclear Instruments and Methods B, vol. 166-67, pp. 920-926.
- Matzke H., Spino J., 1997**, Formation of the RIM structure in high burnup fuel, J Nucl Mater, vol. 248, pp. 170-179.
- Mitutoyo, 1995**, User's Manual, Laserscan micrometer LSM-3100, Mitutoyo Corp., Kanagawa, pp. 190.
- Moneyron G., 1990**, Technologie et fabrication du combustible à base d'uranium, Techniques de l'Ingénieur, vol. Génie nucléaire, n°B3620, pp. 15.
- Morillo J., 1985**, Défauts d'irradiation dans les carbures et oxydes d'uranium, Ann. Chim. Fr., vol. 10, pp. 425-444.
- Nadeau J.S., 1969**, Dependence of flow stress on nonstoichiometry in oxygen-rich uranium dioxide at high temperatures, J. am. ceramic soc, vol. 52, n°1, pp. 1-7.
- Ohji T., Yamauchi Y., 1992**, Long-term tensile creep testing for advanced ceramics, J. Am. Ceram. Soc., vol. 75, n°8, pp. 2304-2307.
- Olivier C., 2004**, Amélioration de la durée de vie, Rencontre internationale d'Evry, 13 octobre 2000.
- Paquin L., 2002**, Gestion et approche pragmatique des choix, Rapport de la vraie vie, Université Rennes.
- Perez V., 1993**, Contribution à l'étude de la dispersion de particules de phases secondaires dans le dioxyde d'uranium polycristallin, PhD, CENG, INPG, Grenoble.
- Rachev V.V., Kovba L.M., Ippolitova E.A., 1964**, Dokl. Akad. Nauk SSR, Dokl. Phys. Chem., vol. 159, n°6, pp. 1373-1150.
- Rapperport E.J., Huntress A.M., 1960**, Deformation modes of single crystal uranium dioxide from 700°C to 1900°C, Nuclear Metals Report, n°1242, pp. 1-29.
- Rendtel A., Hübner H., 2001**, Precise tensile creep measurement with refractory ceramics, Ceram. Forum Internat., vol. 78, n°8, pp. E45-47.
- Roberts J.T.A., Ueda Y., 1972**, Influence of porosity on deformation and fracture of UO₂, J. am. ceramic soc, vol. 55, n°3, pp. 117-124.
- Roth R.S., Negas T., Cook L.P., 1981**, Phase diagrams for ceramists, ed. Smith G., American Ceramic Society, Columbus, vol. Vol. IV.
- Roth R.S., Negas T., Cook L.P., 1983**, Phase diagrams for ceramists, ed. Smith G., Clevinger M.A., American Ceramic Society, Columbus, vol. Vol. V.
- Routbort J.L., Voglewede J.C., 1973**, Creep of mixed-oxide fuel pellets at high stress, J. am. ceramic soc, vol. 56, n°6, pp. 330-333.

Sauter F., 2001, Modélisation du comportement viscoplastique du dioxyde d'uranium, PhD, LEMTA, INPL, Nancy.

Sawbridge P.T., Sykes E.C., 1970, Electrostatic charges on dislocations in uranium dioxide, Journal of Nuclear Material, n°35, pp. 122-125.

Scheibe H., 1965, Intereram.

Schlutig S., 2001, Contribution à l'étude de la pulvérisation et de l'endommagement du dioxyde d'uranium par les ions lourds rapides, PhD, CIRIL, UNIVERSITE de CAEN.

Seeger A., 1962, Radiation damage in solids, in : IAEA, Vienna, vol. I, pp. 101.

Seltzer M.S., Clauer A.H., Wilcox B.A., 1972, The influence of stoichiometry on compression creep of polycrystalline UO_{2+x} , Journal of Nuclear Materials, vol. 44, pp. 331-336.

Slagle O.D., 1984, Deformation behaviour of UO_2 above 2000°C, J. am. ceramic soc., vol. 67, n°3, pp. 169-174.

Solomon A.A., Yust C.S., Packan N.H., 1982, Primary creep of UO_2 and the effect of amorphous grain boundary phases, Journal of Nuclear Materials, vol. 110, pp. 333-342.

Szenes G., 1983, , Nucl. Instr. and Meth., vol. B116, pp. 141.

Timoshenko S., 1930, Strength of materials, New York, D. Van Nostrand.

Tottle C.R., 1965, Mechanical properties of uranium compounds, ANL-7070, Argonne National Laboratory, Argonne.

Toulemonde M., Paumier E., Dufour C., 1993, , Rad. Eff. Sol., vol. 126, pp. 205.

Vigouroux J.-P., 1995, Les matériaux et la maîtrise électronucléaire, Revue générale nucléaire, vol. 5, n°Sept-oct., pp. 350-352.

Vivant-Dugay C., 1998, Contribution à l'étude du fluage du dioxyde d'uranium, rôle des activateurs de croissance cristalline., PhD, INSA, Lyon.

Wagner T., Hincelin M., 2003, Accords entre une approche physique et biologique de différents capteurs magnétiques, Note technique Finale CPP, Ed. Bouzey, INPL.

Wiss T., 1997, Etude des mécanismes d'endommagement de UO_2 et autres matériaux nucléaires par irradiation avec des ions lourds de haute énergie, PhD, Parix Sud XI, Orsay.

Yaggee F.L., Mattas R.F., Neimark L.A., 1980, Characterisation of irradiated Zircalloys : susceptibility to stress corrosion cracking, Documentation Technique Final, EPRI NP-1557 pro. 1027, EPRI.

Yagnik S.K., Machiels A.J., Yang R.L., 1999, Characterization of UO_2 irradiated in the BR-3 reactor, Journal of Nuclear Materials, vol. 270, pp. 65-73.

Yust C.S., McHargue C.J., 1969, Dislocations substructures in deformed uranium dioxide single crystals, Journal of Nuclear Materials, vol. 31, pp. 121-137.

Ziegler J., Biersack J., Littmark U., 1985, The Stopping and Range of Ions in Solids, New-York, Pergamon Press.



Pour en savoir plus, télécharger les fichiers, ou même tout simplement pour en discuter, n'hésitez pas à venir faire un tour sur le site web :

www.ccreeks.com

Ce sera même l'occasion de discuter d'autres sujets, pourquoi pas...
A bientôt,

Christian COLIN

Résumé

Ces travaux de thèse s'inscrivent dans le cadre des études sur les interactions pastille-gaine dans les assemblages combustibles utilisés dans les centrales nucléaires. En effet, l'exploitant (EDF) doit assurer et démontrer l'intégrité de l'ensemble des crayons composant l'assemblage. Pour cela, on doit notamment connaître (et si possible maîtriser) les propriétés viscoplastiques du combustible. Le but de cette thèse a été de caractériser le fluage du dioxyde d'uranium dans des conditions de transitoires de puissance de centrale nucléaire. Nous nous sommes intéressés aux résultats disponibles dans la littérature sur le comportement mécanique du dioxyde d'uranium UO_2 . Ce sont essentiellement des essais de compression qui ont permis de caractériser le fluage de la céramique nucléaire, et qui ont prouvé que le fluage du dioxyde d'uranium est caractérisé par deux types comportements, en fonction du niveau de contrainte appliqué. Pour évaluer les sollicitations dans la pastille combustible, EDF ou CEA ont développé des codes de calcul spécifiques, dit globaux. Partant d'un de ces calculs lors des transitoires de puissance, nous avons dégagé les ordres de grandeur des sollicitations vues par le combustible (température, gradients thermiques, déformations, vitesses de déformations,...). Le calcul des contraintes lors de transitoires de puissance nécessite l'identification de lois de comportement capables de décrire le comportement de la céramique pour de faibles taux de déformation et, notamment, sous des contraintes de traction. Partant de ce constat nous avons choisi de caractériser le comportement du dioxyde d'uranium en flexion. Le cahier des charges de cette étude imposant de prélever les échantillons directement dans les pastilles, ceci dans un souci de représentativité, l'entraxe de sollicitation a été fixé à 10 mm. Pour cette étude nous avons donc développé un dispositif spécifique de flexion trois points pouvant atteindre 2 000°C sous atmosphère contrôlée ($\text{Ar} + 5\%\text{H}_2$) grâce à un four graphite chauffé par induction. Une attention particulière a été portée sur la mesure de la flèche ; elle est assurée par un extensomètre à ombrage laser dédié, d'une résolution de $\pm 2 \mu\text{m}$ à haute température. En utilisant ce dispositif, nous avons testé en fluage des éprouvettes d'épaisseur 0,5 à 1 mm. Dans nos conditions d'essai, le fluage stationnaire a pu être décrit à l'aide d'une loi de Norton avec un exposant de contrainte de 1,73 et une énergie d'activation de 540 kJ.mole^{-1} . Nous avons ensuite modélisé le comportement mécanique du combustible : l'introduction de variables internes dans une loi à écrouissage cinématique a permis de représenter l'ensemble des courbes de fluage et les phénomènes de recouvrance de la déformation présentés lors de déchargements partiels. L'identification a été réalisée par méthode inverse, couplant optimisation des paramètres et calcul par éléments finis des déformations de l'éprouvette de flexion. L'application de cette loi dans un calcul de transitoire de puissance démontre que les capacités de relaxation du matériau ne permettent pas de prévenir une rupture radiale du combustible en fin de montée de puissance. Lors du maintien à puissance élevée, la température élevée à cœur autorise une diminution des contraintes, notamment près des évidements. Il en résulte un écoulement de matière principalement axial, clairement confirmé par l'observation de pastilles usagées. L'application finale de notre dispositif expérimental a été de tester des éprouvettes implantées aux ions, sur une profondeur de 50 μm . La faible épaisseur de nos échantillons a permis de mettre en évidence l'effet de l'irradiation sur le fluage de UO_2 .

Mots-clés : dioxyde d'uranium, fluage, flexion 3 points, haute température, loi de comportement, viscoplasticité, irradiation.

Abstract

These PhD work in the frame of Pellet-Cladding Interactions studies, in the fuel assemblies of nuclear plants. Electricité de France (EDF) must well demonstrate and insure the integrity of the cladding. For that purpose, the viscoplastic behaviour of the nuclear fuel has to be known and, if possible, controlled. This PhD work aimed to characterize the creep of uranium dioxide, in conditions of transient power regime. First, a literature survey on mechanical behaviour of UO_2 revealed that the ceramic was essentially studied with compressive tests, and that its creep behaviour is characterized by two domains, depending on the stress level. To estimate the loadings in a fuel pellet, EDF and CEA developed specific global codes. A simulation during a power ramp allowed the order of magnitude of the loadings in the pellet to be determined (temperature, thermal gradients, strains, strain rate...). The stress calculation using a finite element simulation requires the identification of behaviour laws, able to describe the behaviour under small strains, low strain rates, and under tensile stresses. Starting from this observation, three point bending method has been chosen to test the uranium dioxide. As, for representativity reasons, testing specimens cut in actual fuel pads was required in our study ; a ten millimeters span has been used. For this study, a specific three-point testing device has been developed, that can tests specimens up to 2 000°C in a controled atmosphere ($\text{Ar} + 5\% \text{H}_2$). A special care has been taken for the measurement of the deflexion of the sample, which is measured using a laser beam, that allow an accuracy of $\pm 2 \mu\text{m}$ to be reached at high temeperature. Specimens with 0,5 to 1 mm thickness have been tested using this jig. A Norton's law describe, with respective stress exponent and activation energy values of 1.73 and 540 kJ.mole^{-1} , provided a good description of the stationary creep rate. Then, the mechanical behaviour of the fuel has been modeled. The introduction of internal variables in a law describing a kinematic hardening of the material allowed the first two stages of creep and the recovery phenomena observed during partial unloadings to be described. The identification was realized by inverse method, coupling an optimization of the parameters with a finite element calculation of the deformation of the bending specimen. The application of this model to simulate a transient power ramp demonstrated that the expected stress relaxation in the fuel does not prevent a radial break of pellet at the end of the power increase. During a maintain at high power, the high temperature in the core of the pellet allows a stress relaxation, especially close from the hollows. That results in a flow of the ceramic, mainly axial, that is clearly confirmed by the observation of used pellets. A final application of our experimental device consisted in testing ion-irradiated specimens, with a 50 μm penetration depth. The small thickness of our samples allows the effect of an irradiation on the creep of UO_2 to be revealed.

Keywords : uranium dioxide, creep, bending test, modeling, viscoplastic behaviour, irradiation.